

**Untersuchung
der Feinstrukturaufspaltung von
Natrium-Rydberg-Zuständen**

**Inaugural-Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München**

**vorgelegt von
Gerhard Leuchs
aus Wuppertal**

München, Januar 1978

Untersuchung
des Feinschnitts und der Stellung von
Horn um Fyrborg (Zustand)



Digitized by the Internet Archive
in 2026

Untersuchung der Feinstrukturaufspaltung von Natrium-Rydberg-Zuständen

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität München



vorgelegt von
Gerhard Leuchs
aus Wuppertal

München, Januar 1978



- | | |
|---------------------|------------------------|
| 1. Berichterstatter | Prof. Dr. H. Walther |
| 2. Berichterstatter | Prof. Dr. W. Steinmann |

Tag der mündlichen Prüfung 21. 2. 1978

INHALTSVERZEICHNIS

Seite

	ZUSAMMENFASSUNG	1
1.	EINLEITUNG	4
2.	METHODEN ZUR MESSUNG DER FEINSTRUKTUR- AUFSPALTUNG VON RYDBERG-ZUSTÄNDEN	9
2.1.	Methoden mit Doppler-begrenzter Auflösung	9
2.2.	Doppler-freie Methoden	11
2.2.1.	Fluoreszenz-Messung am kollimierten Atom- strahl	13
2.2.2.	Gesättigte Absorption	14
2.2.3.	Zwei-Photonen-Spektroskopie	16
2.2.4.	Doppelresonanz Methode	19
2.2.5.	Quantum-Beat Methode	21
2.2.5.A.	Quantum-Beats beobachtet in der Fluoreszenz	24
2.2.5.B.	Quantum-Beats beobachtet in der Absorption zu einem gebundenen Zustand	26
2.2.6.	Level-Crossing Methode	28
3.	QUANTUM-BEAT METHODE ANGEWENDET AUF RYD- BERG-ZUSTÄNDE	31
3.1.	Feldemission von Rydberg-Atomen	34
4.	EXPERIMENTELLER AUFBAU	40
4.1.	Frequenzveränderlicher Laser	40
4.2.	Nachweisapparatur	42
5.	MESSUNGEN UND ERGEBNISSE	50
5.1.	Spektren von Rydberg-Serien	50
5.2.	Quantum-Beat Messungen an Zuständen der Natrium n^2D -Serie ($n=21$ bis $n=31$) bei Beobachtung der Feldionisation	56
6.	SCHLUSSBEMERKUNG	80
	LITERATURVERZEICHNIS	83

ZUSAMMENFASSUNG

Die hochangeregten, Wasserstoff-ähnlichen Zustände von Atomen (Rydberg-Zustände) besitzen eine Reihe bemerkenswerter Eigenschaften. Lebensdauern, Polarisierbarkeiten und mittlere Radien der Ladungsverteilung des äußeren Elektrons sind ungewöhnlich groß. Atome in Rydberg-Zuständen sind daher sehr empfindlich gegen Stöße und äußere Felder. Bis vor einigen Jahren konnte deshalb die einzige Information über diese Zustände nur aus astronomischen Messungen gewonnen werden. Spektroskopische Daten sowie die daraus berechneten Quantendefekte und Feinstrukturaufspaltungen sind von großem Interesse für die Theorie, da aus diesen Daten die Wechselwirkung zwischen äußerem Elektron und Ionenrumpf für fast beliebige Abstände ermittelt werden kann. Zur Bestimmung kleiner Aufspaltungen von Spektrallinien stehen Methoden der hochauflösenden Spektroskopie zur Verfügung, die eine Auflösung unterhalb der Doppler-Verbreiterung zulassen. Beispiele hierfür sind die gesättigte Absorption, die Zwei-Photonen-Spektroskopie und die Fluoreszenzmessung am kollimierten Atomstrahl. Die Auflösung ist dabei durch die natürliche Linienbreite des Übergangs bzw. durch die spektrale Verteilung des anregenden Lichts begrenzt. Andere Methoden der hochauflösenden Spektroskopie, die bereits mit klassischen Lichtquellen erprobt worden sind und die eine Dopplerfreie Spektroskopie zulassen, sind die Doppelresonanz, die Level-Crossing und die Quantum-Beat Methode. Hierbei werden jedoch nur Aufspaltungen gemessen; die absoluten Wellenlängen der

Obergänge können dabei nicht bestimmt werden. Die Anregung kann spektral breitbandig erfolgen. Entsprechende Untersuchungen werden an Atomen in der Gasphase bei so geringem Dampfdruck durchgeführt, daß interatomare Wechselwirkungen ausgeschlossen werden können.

Ziel dieser Arbeit war es, Feinstrukturaufspaltungen von Natrium Rydberg-Zuständen der nd-Serie ($n^2D_{3/2}$ - $n^2D_{5/2}$) zu messen. Für die Untersuchungen wurde die Quantum-Beat Methode eingesetzt, da diese bei vergleichsweise geringem experimentellen Aufwand die höchst-mögliche Auflösung liefert. Bei der Quantum-Beat Methode werden die benachbarten Zustände, deren Abstand bestimmt werden soll, kohärent durch einen Lichtimpuls angeregt; der Frequenzabstand kann dann über die Modulation des Fluoreszenzlichts beobachtet werden, die dem exponentiellen Abfall der Fluoreszenz überlagert ist. Die Modulationsfrequenz bzw.-frequenzen entsprechen der Aufspaltung.

Da die Lebensdauer der Rydberg-Zustände mit n^3 zunimmt, ist bei Natrium eine Beobachtung der Quantum-Beats für $n > 16$ nicht möglich. Um höher liegende Zustände untersuchen zu können, muß die Quantum-Beat Methode modifiziert werden. Dabei erweist es sich als günstig, statt der Fluoreszenzphotonen, die unter dem Einfluß eines elektrischen Feldes emittierten Elektronen zu beobachten. Es konnte im Rahmen dieser Arbeit gezeigt werden, daß nach einer kohärenten Anregung die Feldemissionswahrscheinlichkeit mit der Aufspaltungsfrequenz moduliert ist, so daß auch auf diese Weise Quantum-Beats beobachtbar werden. Mit der

neuen Methode können Aufspaltungen von Zuständen mit Hauptquantenzahlen $n > 20$ bestimmt werden. Limitiert wird diese neue Methode durch zwei Effekte. Diese sind die endliche Verweildauer der Atome im Beobachtungsvolumen und die Stöße der Atome mit den Restgasatomen in der Vakuumapparatur bzw. mit Atomen der gleichen Sorte. Die Messungen müssen daher an einem Atomstrahl durchgeführt werden. Um eine hohe Auflösung zu erreichen, muß das Beobachtungszeitintervall entsprechend lang gewählt werden. Relativ zur Anregungsenergie der untersuchten Zustände ist die bei den vorliegenden Messungen erreichte Auflösung größer als 10^9 .

Die vorgestellte Methode ist auch interessant im Hinblick auf das Studium von Rydberg-Serien in Zwei-Elektronen-Spektren. Bei diesen Atomen kann zusätzlich noch eine Information über die Störungen der Feinstrukturaufspaltung durch doppelt angeregte Zustände erwartet werden, deren Untersuchung aus diesem Grund von Interesse ist.

1. EINLEITUNG

Rydberg-Zustände sind hochangeregte Wasserstoff-ähnliche Zustände von Atomen oder Molekülen, die sich durch eine Reihe interessanter Eigenschaften auszeichnen und deren charakterisierende Größen durch einfache Serienformeln beschrieben werden können. So sind die Termlagen der Zustände einer Rydberg-Serie gegeben durch

$$E_n = -R/(n-\delta_1)^2 = -R/n^{*2} \quad (R=\text{Rydberg-Konstante})$$

Dabei ist $n^*=n-\delta_1$ die effektive Hauptquantenzahl und δ_1 der von der Bahndrehimpulsquantenzahl l abhängige Quantendefekt. Die durch $\delta_1 > 0$ beschriebene Absenkung der Energie beruht im wesentlichen auf dem Eindringen des äußeren Elektrons in den Ionenrumpf und ist daher für Zustände mit extremer Exzentrizität (großes $(n-l)$) maximal.

Der mittlere Radius r der Ladungsverteilung des äußeren Elektrons hängt quadratisch von der effektiven Hauptquantenzahl n^* ab. Zum Beispiel ist $r=800\text{\AA}$ für $n^*=40$, was bedeutet, daß für sehr große n^* die Wechselwirkung zwischen Rydberg-Atomen und elektromagnetischer Strahlung nicht mehr in der Dipolnäherung beschrieben werden kann.

Die Lebensdauer der Zustände nimmt mit n^{*3} zu, folglich ist die natürliche Linienbreite proportional $1/n^{*3}$. Da auch die Spin-Bahn-Kopplung mit $1/n^{*3}$ abnimmt, können Feinstrukturaufspaltungen bis zu höchsten Hauptquantenzahlen aufgelöst werden, sofern die Auflösung nur durch die natürliche Linienbreite begrenzt ist.

Diese Eigenschaften machen Rydberg-Zustände zwar interessant, bereiten aber auch bei der experimentellen Untersuchung Schwierigkeiten. Sehr lange Lebensdauern ($\tau > 1 \text{ ms}$) machen eine Beobachtung der Fluoreszenz unmöglich. Ferner kann die Anregung von Rydberg-Zuständen nicht in einer Entladung stattfinden, da die proportional zum Quadrat der Radien wachsenden Stoßquerschnitte zu störenden Stoßprozessen führen /1/. Darüberhinaus ist aufgrund der niedrigen Bindungsenergie des äußeren Elektrons die Polarisierbarkeit $\propto$ der Rydberg-Atome sehr hoch ($\propto n^7$) /2,3,4/, eine Tatsache, die ihre empfindliche Reaktion auf äußere elektrische Felder erklärt. Rydberg-Zustände müssen daher unter stoßfreien Bedingungen optisch angeregt werden. Die geringe spektrale Energiedichte klassischer Lichtquellen läßt Untersuchungen nur in beschränktem Umfang zu.

Termlagen und Aufspaltungen von S-, P- und D-Zuständen wurden bis zu $n=10$ gemessen, Termlagen der P-Zustände bis zu $n=50$ /5/. Unter Verwendung frequenzabstimmbarer Farbstofflaser dagegen können Rydberg-Zustände bis zu hohen Hauptquantenzahlen ($n > 100$) selektiv angeregt werden. Daten über die Polarisierbarkeiten der Rydberg-Zustände sind von Interesse für die Astrophysik. Aus interstellaren Regionen ionisierten Wasserstoffs, sogenannten HII Regionen, werden in der Radioastronomie aufgrund von Rekombinationsprozessen Mikrowellen-Obergänge $E_n \rightarrow E_{n-1}$ zwischen Rydberg-Zuständen des atomaren Wasserstoffs beobachtet. Aus den Übergangsfrequenzen und Linienbreiten erhält man nicht nur Information über Temperaturen, Turbulenzen und Driftbewegungen, sondern es besteht auch die Möglichkeit äußere elektrische Felder zu bestimmen.

Die hohen Stoßquerschnitte und niedrigen Bindungsenergien machen Rydberg-Zustände interessant hinsichtlich des Studiums chemischer Reaktionen. Ferner lassen sich Ionisationspotentiale von Atomen und Molekülen aus Rydberg-Serien mit großer Genauigkeit berechnen /6/. Untersuchungen von Rydberg-Zuständen sind auch wichtig für das Verständnis inneratomarer Ladungsverteilungen, denn die Struktur der Elektronenhülle eines Atoms mit mehreren Elektronen läßt sich aufgrund ihrer Komplexität nur mit enormem Aufwand exakt berechnen. Die Theorie bedient sich daher verschiedener Näherungsverfahren. Für den Fall der Alkali-Atome, die nur ein Valenzelektron außerhalb abgeschlossener Elektronenschalen besitzen, können gute Ergebnisse erzielt werden, wenn die Rechnungen mit nur einem Elektron durchgeführt und Effekte der inneren Elektronen durch ein modifiziertes Coulomb-Potential berücksichtigt werden /7/. Um eine Polarisierung in der Elektronenhülle oder Korrelationseffekte zwischen der Bewegung der Elektronen mit in die Rechnung einzuschließen, müssen entweder weitere Näherungen gemacht werden, oder es muß von vornherein mit Mehrteilchen-Wechselwirkungen gerechnet werden. Zur experimentellen Überprüfung solcher Theorien ist es vorteilhaft Meßreihen durchzuführen, bei denen möglichst wenige Parameter systematisch variiert werden. Hierzu eignet sich die Untersuchung von Rydberg-Serien, denn es wird nur die Hauptquantenzahl variiert. Auf diese Weise wird die Wechselwirkung eines äußeren Elektrons mit dem Ionenrumpf für fast beliebige Entfernungen bestimmt.

Eine in diesem Zusammenhang sehr interessante Größe ist die

Feinstrukturaufspaltung der Rydberg-Zustände. Während die Feinstrukturaufspaltung der n^2P -Zustände von Alkali-Atomen dem $1/n^3$ Gesetz gut folgt, zeigen die n^2D -Zustände starke Abweichungen. Die Aufspaltungen der n^2D -Zustände in Lithium stimmen zwar bis auf kleine Abweichungen mit den Wasserstoffwerten überein /8,9, 10,11/, für die beiden nächst schwereren Alkali-Atome, Kalium und Natrium jedoch, ist die Feinstrukturaufspaltung invertiert, was bedeutet, daß der $n^2D_{3/2}$ -Zustand über dem $n^2D_{5/2}$ -Zustand liegt /12,13/. Bei Rubidium ist nur noch der tiefste n^2D -Zustand invertiert ($n=4$) /14,15/, wogegen bei Cäsium wieder alle Zustände normal liegen und nur geringe Abweichungen vom $1/n^3$ Gesetz aufweisen /16/. In jedem Fall aber lassen sich die experimentellen Werte durch eine Serienformel beschreiben, wenn zu dem $1/n^3$ Term ein $1/n^5$ Term hinzugenommen wird /12,15/. Für den Fall der n^2D -Zustände von Natrium konnten die experimentell gefundenen Aufspaltungen durch theoretische Berechnungen bis zu $n=16$ einigermaßen angenähert werden /17,18/, wobei aber noch systematische Abweichungen auftreten. Neben der Größe und dem Vorzeichen der Feinstrukturaufspaltung zeigt auch das Intensitätsverhältnis innerhalb der Alkali-Feinstruktur-Dubletts Anomalien. Das Intensitätsverhältnis für die $n^2P_{3/2}$, $n^2P_{1/2} \rightarrow n^2S_{1/2}$ Übergänge der Hauptserie der Alkali-Atome weicht mit wachsendem n zugunsten des Übergangs von $n^2P_{3/2} \rightarrow n^2S_{1/2}$ von dem aus den statistischen Gewichten berechneten Verhältnis ab. Diese Tatsache ist durch die Beimischung von tieferliegenden Zuständen durch die Spin-Bahn-Kopplung zu erklären. Bei Cäsium ergibt sich dabei ein Problem, da sich sowohl experimentelle als auch theoretische Ergebnisse teilweise widersprechen und die Frage, ob das

Intensitätsverhältnis zwischen $n=10$ und $n=20$ ein Maximum hat, noch offen ist /19/.

Bevor auf die in dieser Arbeit erstmalig angewandte Methode der Quantum-Beats bei Beobachtung der Feldionisation näher eingegangen wird, werden im folgenden Kapitel die verschiedenen experimentellen Methoden zur Bestimmung der Feinstrukturaufspaltungen kurz beschrieben.

2. METHODEN ZUR MESSUNG DER FEINSTRUKTURAUFSPALTUNG VON RYDBERG-ZUSTÄNDEN

Die spektroskopischen Methoden zur Bestimmung von Aufspaltungen von Rydberg-Zuständen lassen sich in zwei Gruppen unterteilen. Methoden, bei denen die Auflösung durch die Doppler-Verbreiterung begrenzt ist, sind nur auf tiefer liegende Rydberg-Zustände anwendbar ($n < 10$), während mit den Doppler-freien Methoden auch Feinstrukturaufspaltungen von Zuständen mit sehr hohen Hauptquantenzahlen $n \approx 100$ gemessen werden können.

2.1. Methoden mit Doppler-begrenzter Auflösung

Die einfachste Methode ist die direkte Beobachtung der Absorption. Die zur Aufnahme eines Absorptionsspektrums erforderliche Anordnung ist in Abb.1 dargestellt.

Die Strahlung einer Lichtquelle, deren spektrale Verteilung ein breites Kontinuum ist, wird durch den Atomdampf in einer Absorptionszelle auf den Eintrittsspalt eines Spektrographen fokussiert und das Spektrum mit Hilfe einer Fotoplatte aufgenommen. Die atomaren Übergänge werden als Absorptionslinien in dem Kontinuumsspektrum beobachtet. Die Auflösung wird zunächst durch die Güte des verwendeten Gitters und durch die Baulänge des Spektrographen bestimmt. Aufgrund der thermischen Geschwindigkeitsverteilung der Atome in der Zelle sind die Absorptionslinien Doppler-verbreitert, was dem Auflösungsvermögen $\nu/\Delta\nu$ dieser Absorptionsmethode eine obere Grenze setzt ($\approx 10^6$). Ein weiterer Nachteil der hier beschriebenen Anordnung

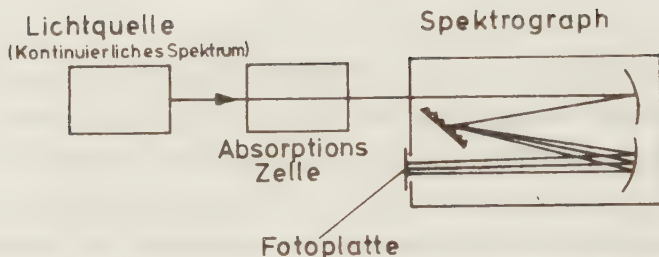


Abb.1: Experimenteller Aufbau zur Aufnahme eines Absorptionsspektrums.
Die Strahlung einer Lichtquelle mit kontinuierlichem Emissionsspektrum wird durch eine Absorptionszelle auf den Eintrittsspalt eines Spektrographen fokussiert und das Absorptionsspektrum mit Hilfe einer Fotoplatte aufgenommen.

ist, daß nur Serien von Zuständen untersucht werden können, die nach den Auswahlregeln für elektrische Dipolübergänge mit dem Grundzustand verbunden sind.

Diese Einschränkung kann umgangen werden, wenn wie z.B. bei Erdalkali- oder Edelgas-Spektren angeregte metastabile Zustände existieren, die sich durch Elektronenstoß oder in einer Entladung effektiv besetzen lassen /20/. Ausgehend von einem solchen metastabilen Zustand lassen sich dann höher liegende Zustände untersuchen, die nicht direkt vom Grundzustand aus besetzt werden können /21/. Für die Untersuchung der Feinstrukturaufspaltungen höher angeregter Rydberg-Zustände muß die Doppeler-Verbreiterung vermieden werden, da bei diesen Zuständen die

Aufspaltung vergleichbar bzw. kleiner als die Doppler-Verbreiterung ist.

2.2. Doppler-freie Methoden

Die wichtigsten Methoden für Doppler-freie Untersuchungen von angeregten atomaren Zuständen sind in Tabelle 1 zusammengefaßt /22,23/. Die erste Gruppe umfaßt Methoden, bei denen eine schmalbandige optische Anregung erforderlich ist, da die Auflösung von der Linienbreite des anregenden Lichts abhängt. Bei der zweiten Gruppe erfolgt die Anregung breitbandig. Daher können hier nur Aufspaltungen, nicht aber absolute Lagen der Zustände mit Doppler-freier Auflösung gemessen werden. Die Methoden, bei denen der Nachweis über die Fluoreszenz geführt wird, sind auf tiefer liegende Rydberg-Zustände beschränkt. Bei höher liegenden Rydberg-Zuständen kann wegen der langen Lebensdauern keine Fluoreszenz mehr beobachtet werden. Der Nachweis wird daher über die Ionisation geführt. Im thermoionischen Detektor wird die Ionisation durch Stöße erreicht und der Ionenstrom gemessen /29/. Der Nachweis der Rydberg-Atome kann aber auch über Photo- /30/ oder Feldionisation /31,32,33/ vorgenommen werden. Bei der Feldionisation wird durch ein äußeres elektrisches Feld die Ionisationsgrenze des Atoms abgesenkt, so daß höher liegende Zustände ionisiert werden. Um Störungen durch das elektrische Feld zu vermeiden, müssen Anregung und Feldionisation räumlich oder zeitlich getrennt werden. Im folgenden werden die in Tabelle 1 aufgeführten Methoden näher beschrieben.

TABELLE 1: DOPPLER-FREIE SPEKTROSKOPIE AN RYDBERG-ATOMEN

METHODE	LICHTQUELLE	NACHWEIS, ERREICHTE HAUPTQUANTENZAHLEN	BEMERKUNGEN
FLUORESZENZMESSUNG AM KOLLIMIERTEN ATOMSTRAHL	SCHMALBANDIG 1)	FLUORESZENZ, N=3 / 24/ LITHIUM	BANDBREITE DER LICHTQUELLE BESTIMMT AUFLÖSUNG, 3), 4)
GESÄTTIGTE ABSORPTION	SCHMALBANDIG 1)	ABSORPTION, N=3 / 25/ NATRIUM	4), ZUR SÄTTIGUNG DES ÜBERGANGS BENÖTIGTE INTENSITÄT WÄCHST MIT N
ZWEI-PHOTONEN SPEKTROSKOPIE	SCHMALBANDIG 1)	FLUORESZENZ, N=32 / 14/ RUBIDIUM STOSSIONISATION, N=65 / 15/ RUBIDIUM	3), 4) 4)
DOPPELRESONANZ (OPTISCH-MIKROWELLEN)	1), 2)	FLUORESZENZ, N=17 / 26/ NATRIUM FELDIONISATION, N=29 / 3/ NATRIUM	3) STÖRENDE STARK-EFFEKT DURCH IONISIERENDES FELD
QUANTUM-BEAT	BREITBANDIG, GEPULST	FLUORESZENZ, N=16 / 12/ NATRIUM ABSORPTION, N=3 / 27/ NATRIUM	3) VERZÖGERUNG DES 2. LICHTPULSES SCHWIERIG ZU VERIFIZIEREN
LEVEL-CROSSING	BREITBANDIG	FLUORESZENZ, N=18 / 28/ CÄSIUM	3)

- 1) GEPULST ODER KONTINUIERLICH
 2) SCHMAL- ODER BREITBANDIG (SCHMALBANDIG : KLEINER ALS DOPPLER-BREITE)
 3) FLUORESZENZINTENSITÄT $\sim 1/n^3$
 4) LINIENBREITE EINES SCHMALBANDIGEN KONTINUIERLICHEN FARBSTOFFLASERS ≈ 1 MHz

2.2.1. Fluoreszenz-Messung am kollimierten Atomstrahl

In einem Atomstrahl kann ein Kollimationsverhältnis von 1:1000 erreicht werden. Die Doppler-Verbreiterung in der Richtung senkrecht zum Atomstrahl wird dadurch um einen entsprechenden Faktor von $\approx 1\text{GHz}$ auf $\approx 1\text{MHz}$ verringert (Kollimationsverhältnis mal Doppler-Breite im Ofen). Steht für die Anregung eine entsprechend schmalbandige abstimmbare Lichtquelle zur Verfügung, können Anregungsspektren aufgenommen werden, wobei der Nachweis über die Fluoreszenz geführt wird (Abb.2). Diese Methode wurde

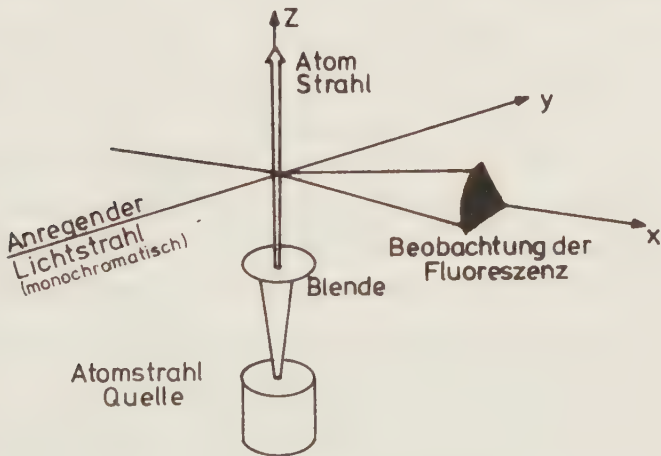


Abb.2: Experimentelle Anordnung für Atomstrahl-Fluoreszenz Experimente.
Durch die Kollimation des Atomstrahls wird die Doppler-Verbreiterung der Atome in Richtungen, die in der x-y-Ebene liegen, unterdrückt. Die Fluoreszenz wird als Funktion der Frequenz des anregenden Lichts registriert.

bisher nur auf tiefliegende Zustände angewendet. Die spektrale Breite der beobachteten Linien ist durch eine Faltung der restlichen Doppler-Breite, der homogenen Verbreiterung des atomaren Übergangs und der Linienbreite des anregenden Lichtes bestimmt. Homogene Verbreiterungen des atomaren Übergangs sind die natürliche Linienbreite und die Druckverbreiterung.

2.2.2. Gesättigte Absorption

Auch die Methode der Gesättigten Absorption verlangt eine schmalbandige, abstimmbare Lichtquelle, wie sie durch einen kontinuierlichen Farbstofflaser gegeben ist. Die untersuchten Atome befinden sich in einer Zelle, in der sich zwei in entgegengesetzten Richtungen laufende Lichtstrahlen gleicher Wellenlänge treffen (Abb.3). Für den Fall, daß die Lichtfrequenz ν_L nicht mit der atomaren Übergangsfrequenz übereinstimmt, wechselwirken die beiden Lichtstrahlen mit verschiedenen Geschwindigkeitsuntergruppen von Atomen, entsprechend der geschwindigkeitsabhängigen Doppler-Verschiebung (Abb.3). Die Abhängigkeit der transmittierten Intensität I von der eingestrahltten Intensität I_0 wird durch das Beersche Gesetz beschrieben,

$$I(\nu) = I_0(\nu) \exp\{-k_\nu NL\},$$

wobei k_ν der frequenzabhängige Absorptionskoeffizient, N die Teilchenzahldichte und L die Länge der Absorptionsstrecke ist. Für hohe Lichtintensitäten ist k_ν intensitätsabhängig $k_\nu = k_\nu(I_0)$. Die Beziehung zwischen I und I_0 wird nichtlinear und die Absorption kommt in die Sättigung. Ist einer der beiden Lichtstrah-

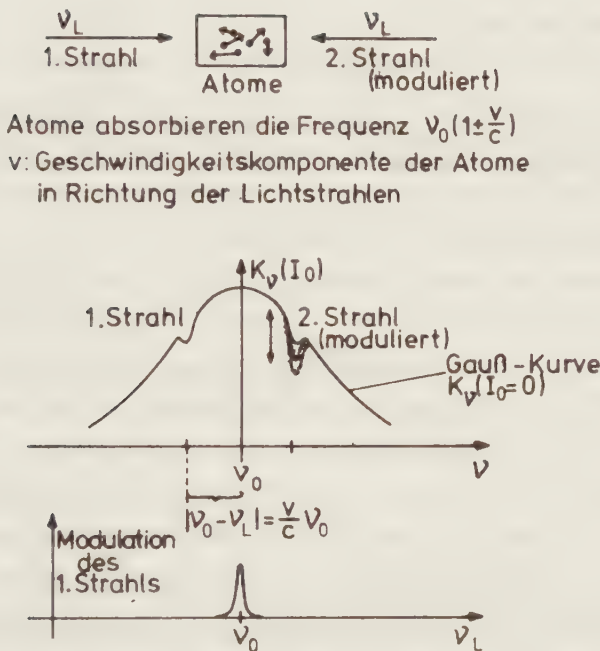


Abb.3: Gesättigte Absorption. Zwei monochromatische Lichtstrahlen gleicher Frequenz ν_L werden aus entgegengesetzten Richtungen in eine Absorptionszelle eingestrahlt. Die Lichtstrahlen wechselwirken entsprechend der Verstimmung von ν_L gegenüber der atomaren Übergangsfrequenz ν_0 mit verschiedenen Geschwindigkeitsuntergruppen von Atomen. Ist der zweite Strahl intensitätsmoduliert, wird diese Modulation im Fall der Resonanz $\nu_L = \nu_0$ über den intensitätsabhängigen Absorptionskoeffizienten $k_\nu(I_0)$ auf den ersten Strahl übertragen. Die Intensitätsabhängigkeit von $k_\nu(I_0)$ beruht auf der bei hohen Intensitäten nichtlinearen Absorption.

len intensitätsmoduliert, so ist bei genügend großer-Intensität auch der Absorptionskoeffizient $k_{\nu}(I_0)$ moduliert. Wenn die Lichtfrequenz nicht in Resonanz mit dem atomaren Übergang ist, wechselwirken beide Lichtstrahlen mit verschiedenen Geschwindigkeitsuntergruppen von Atomen. Die Lichtstrahlen beeinflussen sich gegenseitig nicht. Für den Fall der Resonanz aber wird die Modulation des zweiten Lichtstrahls über den modulierten Absorptionskoeffizienten auf den ersten Lichtstrahl übertragen, da beide Strahlen mit derselben Geschwindigkeitsuntergruppe wechselwirken. Die Modulationsamplitude des ersten Lichtstrahls aufgetragen als Funktion der Lichtfrequenz, ergibt ein Anregungsspektrum ohne Doppler-Verbreiterung der Linien /22,23/.

Das Signal der Gesättigten Absorption rührt nur von einer Geschwindigkeitsuntergruppe her und ist relativ zur Gesamtaborption gesehen ein kleiner Effekt. Die zur Sättigung benötigte Intensität wächst mit zunehmender Hauptquantenzahl, da die Übergangswahrscheinlichkeit abnimmt. Daher sind mit der Methode der "Gesättigten Absorption" bisher keine Messungen an hochangeregten Zuständen durchgeführt worden.

2.2.3. Zwei-Photonen-Spektroskopie

Doppler-freie Anregungsspektren können auch mit der Zwei-Photonen-Absorptionsmethode aufgenommen werden. Dabei befinden sich die Atome in einer Zelle und wechselwirken mit zwei in entgegengesetzten Richtungen laufenden Laserstrahlen, deren Frequenz ν_L aber nur die halbe atomare Übergangsfrequenz ν_0 ist. Ist v die auf die Ausbreitungsrichtung des Lichts projiz-



Atome sehen die Frequenz $\nu_L(1 \pm \frac{v}{c})$

v = atomare Geschwindigkeitskomponente in Richtung des Lichtstrahls

2 Photonen aus einem Strahl $2\nu_L(1 \pm \frac{v}{c})$ (Doppler-Breite noch vorhanden)

1 Photon aus jedem der Strahlen

$$\nu_L(1 + \frac{v}{c}) + \nu_L(1 - \frac{v}{c}) = 2\nu_L \text{ (Doppler-Breite kompensiert)}$$

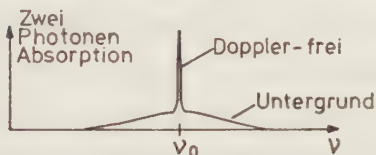


Abb.4: Zwei-Photonen-Absorption.

Die Atome in einer Gaszelle wechselwirken mit zwei in entgegengesetzten Richtungen laufenden Laserstrahlen der gleichen Frequenz ν_L . Die Übergangsfrequenz zwischen dem Grundzustand und einem angeregten Zustand der Atome beträgt ν_0 , wobei ν_0 ungefähr doppelt so groß wie die Laserfrequenz ist. Es gibt dann zwei verschiedene Möglichkeiten für einen Doppelquanten-Übergang. Die simultane Absorption zweier Photonen aus einem der Strahlen führt zu einer Doppler-verbreiterten Absorptionslinie, während die Absorption je eines Photons aus jedem der beiden Strahlen Doppler-frei ist.

Die Auswahlregeln für einen Doppelquanten-Übergang unterscheiden sich von denen für die Absorption eines Photons, denn durch die Absorption zweier Photonen können nur Übergänge zwischen Zuständen gleicher Parität $\Delta l=0$ oder $\Delta l=\pm 2$ induziert werden.

zierte Geschwindigkeit eines Atoms, sieht das Atom von dem einen Strahl die Frequenz $\nu_L(1-v/c)$ und von dem anderen $\nu_L(1+v/c)$. Bei der Zwei-Photonen-Absorption sind zwei Fälle zu unterscheiden. Wird aus jedem der beiden Strahlen vom gleichen Atom je ein Photon absorbiert, ist die insgesamt absorbierte Energie

$$\Delta E = h\nu_L(1+v/c) + h\nu_L(1-v/c) = 2h\nu_L$$

ΔE ist also unabhängig von der atomaren Geschwindigkeit. Dieser Prozeß ist daher Doppler-frei, und wenn Absorption stattfindet, tragen alle Atome dazu bei. Eine Absorption zweier Photonen aus einem der beiden Laserstrahlen dagegen führt zu einem Doppler-verbreiterten Untergrund (Abb.4). Bei einer Anregung hoher Rydberg-Zustände sind die tiefer liegenden Zustände vielfach nicht weit von der Resonanz mit der einfachen Lichtfrequenz entfernt. Die Zwei-Photonen-Übergangswahrscheinlichkeiten sind dann kaum kleiner als die Wahrscheinlichkeit für einen Zwei-Stufen Prozeß. Die Linienbreite des Signals ergibt sich aus der Faltung der Laserlinie mit der homogenen Absorptionslinie des Atoms. Mit dieser Methode wurden Feinstrukturaufspaltungen von n^2D -Zuständen in Rubidium bestimmt /14,15/. Bis zur Hauptquantenzahl $n=32$ konnte der Nachweis über die Fluoreszenz geführt werden, während bei den Messungen bis $n=65$ ein thermoionischer Detektor benutzt wurde. Die Aufspaltung des Rubidium 65^2D -Zustands beträgt 35MHz. Höhere Zustände konnten aufgrund der Linienbreite des anregenden Laserlichts von 15MHz nicht gemessen werden.

2.2.4. Doppelresonanz Methode

Bei der Doppelresonanz Methode wird ein Rydberg-Zustand optisch angeregt und Übergänge zu benachbarten Zuständen durch Einstrahlen von Mikrowellen induziert. Hierbei handelt es sich um elektrische oder magnetische Dipolübergänge. Der Nachweis kann über die Fluoreszenz geführt werden /26/.

Um Mikrowellen-Übergänge zwischen hochangeregten Zuständen nachzuweisen, wird üblicherweise die Feldionisation benutzt. Dies geschieht mit einem zum anregenden Lichtpuls zeitlich verzögerten, langsam ansteigenden elektrischen Feld /3/. Je nach Energie des besetzten Zustands wird das Feldionisationssignal früher oder später beobachtet (Abb.5). Da die Feldionisation sehr kritisch von der elektrischen Feldstärke abhängt (siehe Kapitel 3.1.), ist es möglich die Signale von verschiedenen Zuständen zu diskriminieren, indem die zeitliche Verschiebung der Signale gemessen wird. Die Hochfrequenzübergänge können direkt zwischen den Feinstrukturniveaus induziert werden (magnetische Dipolübergänge) /2/. Feinstrukturaufspaltungen können aber auch aus Messungen der Übergangsfrequenzen zu anderen Rydberg-Zuständen bestimmt werden (elektrische Dipolübergänge, z.B. $d \rightarrow f$) /3/. Die Verwendung der elektrischen Feldrampe hat den Nachteil, daß sich das elektrische Feld und die Hochfrequenz vor der Beobachtung zeitlich teilweise überlappen, was zu einer Verschiebung der Linien des Hochfrequenzspektrums durch Stark-Effekt führen kann. Im Rahmen dieser Arbeit wird vorgeschlagen, daß der Nachweis der Hochfrequenz-Resonanzen auch über eine Änderung in der Win-

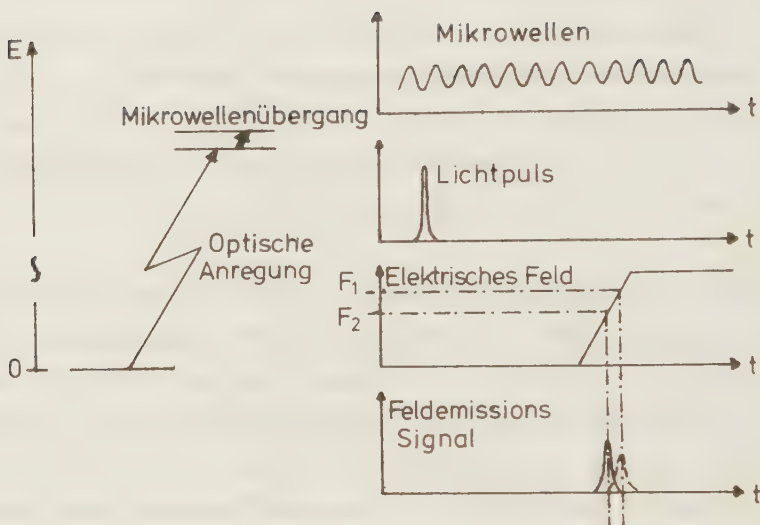


Abb.5: Doppelresonanz Methode

Ein Rydberg-Zustand wird angeregt. Die Besetzung des Zustands wird durch Feldionisation nachgewiesen. Von der Bindungsenergie des Zustands hängt die Größe des zur Ionisation benötigten elektrischen Feldes ab. Wird das elektrische Feld als Funktion der Zeit eingeschaltet, so wird das Feldionisationssignal zu einem bestimmten Zeitpunkt beobachtet. Wird zusätzlich zur optischen Anregung ein Mikrowellen-Übergang zu einem benachbarten Rydberg-Zustand induziert, kann dieser Übergang über die zeitliche Verschiebung des Feldionisationssignals beobachtet werden. Aufgrund der endlichen Zeitauflösung eines Elektronenvervielfachers ($\approx 10\text{ns}$) darf das elektrische Feld nicht zu schnell eingeschaltet werden, da sonst die Feldionisationssignale der beiden Zustände nicht mehr getrennt werden können.

kelverteilung der Photoelektronen geführt werden kann (/34/, siehe Kapitel 5.1.).

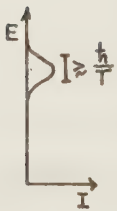
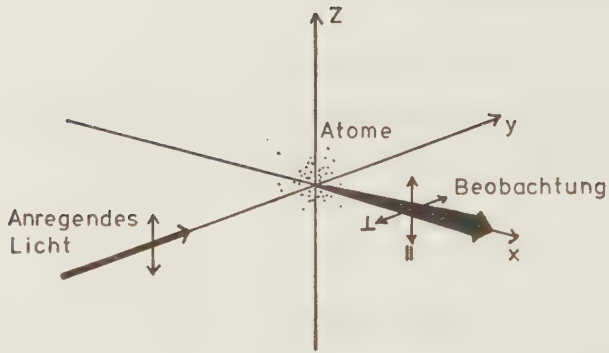
Diese oben erwähnte Schwierigkeit wird ebenfalls umgangen, wenn die Feinstrukturaufspaltung mit der im nächsten Kapitel näher beschriebenen Quantum-Beat Methode gemessen wird.

2.2.5. Quantum-Beat Methode

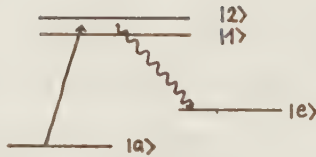
In einem Quantum-Beat Experiment wird die Aufspaltung von benachbarten Energieeigenzuständen eines Atoms gemessen. Beide Zustände müssen durch elektrische Dipolübergänge von einem einzigen Zustand aus erreicht werden können. Die Anregung erfolgt durch einen kurzen Lichtpuls. Auf diese Weise kann ein Zustand des Atoms angeregt werden, der eine Superposition der benachbarten Terme ist, deren Abstand bestimmt werden soll. Der Nachweis dieser kohärenten Anregung kann über die Winkelverteilung der Fluoreszenzintensität oder über die Absorption eines zweiten Lichtpulses geführt werden. Diese Größen werden zeitlich verzögert gegenüber dem anregenden Lichtpuls gemessen. Beobachtet wird eine Modulation, deren Frequenz der Aufspaltung der untersuchten Energiezustände entspricht.

Abb.6 gibt die Erklärung für den Fall der Beobachtung in Fluoreszenz.

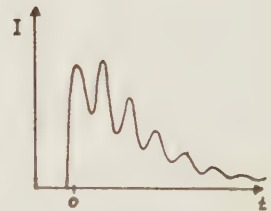
Die Anregung geht aus von einem Anfangszustand $|a\rangle$ über die beiden untersuchten Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ zu dem Endzustand $|e\rangle$. Die im Experiment beobachtete Modulation ist auf eine Interferenz zwischen den beiden Kanälen $|a\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |e\rangle$ und



Spektrale
Verteilung
des anregenden
Lichts



Energieschema des Atoms



Fluoreszenz

Abb.6: Quantum-Beat Methode.

Durch gepulste Anregung wird eine kohärente Mischung der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ erzeugt, die zu einer zeitlich periodischen Änderung der Winkelverteilung der Fluoreszenz führt. Deshalb ist dem exponentiellen Abklingen der Fluoreszenzstrahlung eine Modulation überlagert, die dem Energieabstand zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ entspricht.

$|1a\rangle \rightarrow |12\rangle \rightarrow |1e\rangle$ zurückzuführen. Dabei ist es wesentlich, daß die Messung so durchgeführt wird, daß beide Kanäle ununterscheidbar sind. Die Wahrscheinlichkeit dafür, daß die Anregung über einen der beiden Kanäle erfolgt, wird durch die Matrixelemente des Dipoloperators $\hat{D}$ beschrieben. Mit der Abkürzung $\langle i|\hat{D}|j\rangle = D_{ij}$ heißen die Matrixelemente für den Kanal $|1a\rangle \rightarrow |1i\rangle \rightarrow |1e\rangle$, D_{ia} , D_{ei} , $i=1,2,a,e$. Wird im Experiment gemessen welchen Kanal die Anregung durchläuft, so ist die Gesamtwahrscheinlichkeit gleich der Summe der Wahrscheinlichkeiten für die einzelnen Prozesse: $|D_{ia}D_{ei}|^2 + |D_{ja}D_{ej}|^2$. Sind die Kanäle aber ununterscheidbar, müssen die Wahrscheinlichkeitsamplituden addiert werden: $|D_{ia}D_{ei} + D_{ja}D_{ej}|^2$. Die beiden Ausdrücke unterscheiden sich durch den Term $2 \operatorname{Re}\{D_{ia}D_{ei}D_{ja}^*D_{ej}^*\}$, der die Interferenz beschreibt, wie weiter unten näher ausgeführt wird.

Die Analogie zum Young'schen Doppelspalt Versuch ist offensichtlich. Die beiden Spalte entsprechen den beiden angeregten Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$, und statt einer zeitlichen wird eine räumliche Interferenz beobachtet. Auch im Doppelspalt Versuch wird die Interferenz nur dann beobachtet, wenn im Experiment nicht unterschieden werden kann, über welchen Spalt ein Photon den Schirm erreicht.

Die Möglichkeit der Beobachtung eines Quantum-Beat Signals in der Fluoreszenz oder in der Absorption wird in den nächsten beiden Abschnitten ausführlicher diskutiert.

2.2.5.A. Quantum-Beats beobachtet in der Fluoreszenz

Die für die Beobachtung von Quantum-Beats in der Fluoreszenz erforderliche experimentelle Anordnung ist in Abb.6 skizziert. Die Atome werden durch einen Lichtpuls angeregt. Aufgrund der endlichen Pulsdauer T ist die Frequenzunschärfe jedes Photons aus diesem Lichtpuls $\Delta\nu=1/(2\pi T)$. Wenn der Lichtpuls die den Übergängen $|a\rangle \rightarrow |1\rangle, |2\rangle$ entsprechende Frequenz besitzt und die Frequenzunschärfe der Photonen größer ist als die Aufspaltung $(E_2-E_1)/h$ der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ [$1/2\pi T > (E_2-E_1)/h$], kann eine kohärente Superposition $|\Psi\rangle$ der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ angeregt werden,

$$|\Psi\rangle = \langle 1|\hat{D}|a\rangle|1\rangle + \langle 2|\hat{D}|a\rangle|2\rangle,$$

wobei $\hat{D}$ der elektrische Dipoloperator ist.

Wegen der Zeitunabhängigkeit des Hamilton-Operators des ungestörten Systems, ist der Zeitentwicklungsoperator für die Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$: $\hat{U}(t) = \exp(2\pi i \hat{H}_0 t/h)$,

$$|\Psi(t)\rangle = \langle 1|\hat{D}|a\rangle \exp\{i\omega_1 t\}|1\rangle + \langle 2|\hat{D}|a\rangle \exp\{i\omega_2 t\}|2\rangle$$

Berücksichtigt man noch die natürliche Linienbreite von $|1\rangle$ und $|2\rangle$ mit $\exp(-\Gamma t/2)$, dann ist

$$|\Psi(t)\rangle = \langle 1|\hat{D}|a\rangle \exp\{(i\omega_1 - \Gamma/2)t\}|1\rangle + \langle 2|\hat{D}|a\rangle \exp\{(i\omega_2 - \Gamma/2)t\}|2\rangle$$

Die Fluoreszenzintensität berechnet sich aus

$$\begin{aligned} I &\sim |\langle e|\hat{D}|\Psi\rangle|^2 \\ I &\sim \left\{ |\langle e|\hat{D}|1\rangle \langle 1|\hat{D}|a\rangle|^2 + |\langle e|\hat{D}|2\rangle \langle 2|\hat{D}|a\rangle|^2 \right. \\ &\quad \left. + 2\text{Re}[\langle e|\hat{D}|1\rangle \langle 1|\hat{D}|a\rangle \langle a|\hat{D}|2\rangle \langle 2|\hat{D}|e\rangle \exp(i\omega_1 t - i\omega_2 t)] \right\} \exp(-\Gamma t) \\ I &\sim \{A + B \cos[(\omega_2 - \omega_1)t + \phi]\} \exp(-\Gamma t) \end{aligned}$$

Der exponentielle Abfall der Fluoreszenzintensität ist mit einer Modulation überlagert, deren Frequenz der Aufspaltung der Zustände $|1\rangle$, $|2\rangle$ entspricht (Abb.6).

Die Phase ϕ und die Amplituden A und B werden durch die Matrixelemente des elektrischen Dipoloperators $\langle i|\hat{D}|j\rangle$, $i,j=1,2,a,e$ bestimmt. Anzumerken ist hier, daß die Modulation verschwindet, wenn der Endzustand $|e\rangle$ über die Auswahlregeln nur mit einem der beiden Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ verknüpft ist. Dann ist entweder $\langle e|\hat{D}|1\rangle=0$ oder $\langle e|\hat{D}|2\rangle=0$, in jedem Fall aber $B=0$. Anders ausgedrückt, die Modulation der Fluoreszenz ist zurückzuführen auf eine Interferenz der Wahrscheinlichkeitsamplituden für die Übergänge $|a\rangle \rightarrow |1\rangle \rightarrow |e\rangle$ und $|a\rangle \rightarrow |2\rangle \rightarrow |e\rangle$. Ist einer dieser Kanäle verboten, verschwindet die Interferenzerscheinung.

Die oben geforderte Bedingung an die Lichtpulsdauer $T < 1/(\omega_2 - \omega_1)$ gewährleistet auch, daß die Anfangsphase ϕ hinreichend genau definiert ist und die Modulation nicht verwaschen wird. Zusätzlich dazu muß die Lebensdauer $\tau = 1/\Gamma$ der Zustände größer sein als eine Modulationsperiode $\tau > 2\pi/(\omega_2 - \omega_1)$, da ein zu schnelles Abklingen eine Messung der Modulationsfrequenz unmöglich macht. Das ist aber nur dann der Fall, wenn die Zustände in ihren natürlichen Linienbreiten überlappen. Die Doppler-Breite ist hier keine limitierende Größe, da die Modulation von jedem einzelnen Atom ausgeht.

Da das Quantum-Beat Signal auf einer Änderung der Winkelverteilung der Fluoreszenz beruht, wird auch eine Änderung des Signals erwartet, wenn die Polarisationsrichtung der Beobachtung,

wie in Abb.6 angedeutet, gedreht wird. Der Effekt der Polarisationsdrehung läßt sich wie folgt verstehen. Aus Gründen der Energieerhaltung kann die in den ganzen 4π -Raumwinkel ausgestrahlte Fluoreszenzintensität nicht moduliert sein. Das heißt, die über alle Polarisationen und Winkel summierte Fluoreszenzintensität hat keinen modulierten Anteil:

$$\left(\sum_{4\pi} I_i \right)_{\text{mod}} = 0$$

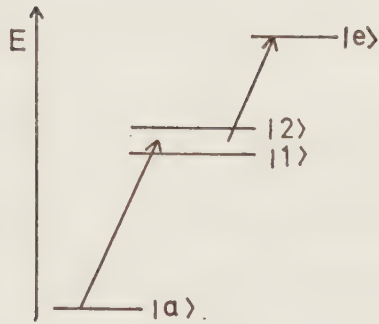
Im dreidimensionalen Raum gibt es drei unabhängige Polarisationen, $i=1,2,3$. Ist eine davon parallel zur Polarisation des anregenden Lichtes, so sind die beiden anderen ununterscheidbar, und man erhält

$$I_{||} + 2I_{\perp} = 0 \quad \text{oder} \quad I_{||} = -2I_{\perp}$$

Variiert man daher die Polarisation der Beobachtung von der Stellung parallel zur z-Achse auf die senkrecht zur z-Achse, so beobachtet man eine Änderung der Modulationsamplitude um 50% und eine Phasenverschiebung um 180° , eine Tatsache, durch die experimentelle Ergebnisse sehr gut überprüft werden können. Quantum-Beats von den Natrium n^2D -Feinstruktur Dubletts sind bis $n=16$ in der Fluoreszenz beobachtet worden /12/.

2.2.5.8. Quantum-Beats beobachtet in der Absorption zu einem gebundenen Zustand

Die Quantum-Beats können statt in der Fluoreszenz auch in der Absorption eines zweiten verzögert eingestrahlten Lichtpulses beobachtet werden, wenn die Absorption dieses Lichtpulses als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Anregungs- und Beobachtungspuls gemessen wird /27/. Abb.7 zeigt das Energieschema ei-



Energieschema des Atoms

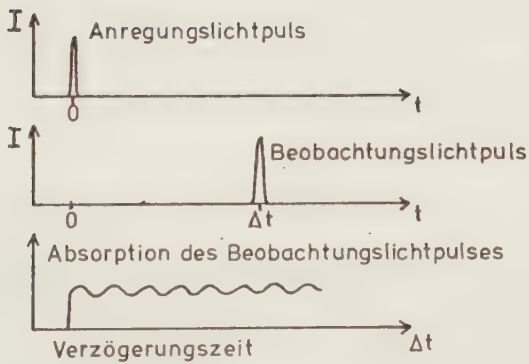


Abb.7: Quantum-Beats beobachtet mit Hilfe der Absorption eines zweiten verzögert eingestrahlt Lichtpulses. Energieschema des Atoms und zeitlicher Ablauf der Lichtpulse und des Signals sind dargestellt.

nes Atoms mit den Zuständen $|a\rangle$, $|1\rangle$, $|2\rangle$ und $|e\rangle$, wobei der Endzustand $|e\rangle$ hier eine höhere Energie als die Zwischenzustände hat.

Der zweite Lichtpuls, über den die Absorption gemessen werden soll, muß ebenso kurz sein wie der Anregungslichtpuls, da die beiden Beobachtungskanäle $|1\rangle \rightarrow |e\rangle$ und $|2\rangle \rightarrow |e\rangle$, wie oben erläutert, ununterscheidbar, also erlaubt sein müssen. In beiden Fällen ist der Wechselwirkungsoperator der elektrische Dipoloperator, daher können die Quantum-Beats in Absorption analog zu den Quantum-Beats in Fluoreszenz beschrieben werden. Abb.7 zeigt das zeitliche Verhalten der Lichtpulse und des Absorptionssignals.

Wieder ist die Phase der Modulation durch die Matrixelemente des elektrischen Dipoloperators also auch durch die Polarisation des zweiten Lichtpulses bestimmt.

2.2.6. Level-Crossing Methode

Die Zustände eines Atoms spalten unter dem Einfluß eines äußeren Magnetfelds auf. Wird das Magnetfeld so groß, daß die Aufspaltung vergleichbar mit dem Abstand zu benachbarten Zuständen ist, kommt es zu Überschneidungen zwischen Zeeman-Niveaus. Mit der Level-Crossing Methode werden die Magnetfelder gemessen, bei denen solche Überschneidungen stattfinden. Die Atome werden in einem äußeren Magnetfeld kohärent angeregt und die Fluoreszenzintensität als Funktion der Größe des Magnetfelds registriert. Überschneiden sich zwei Zeeman-Niveaus, wird eine Änderung der Fluoreszenzintensität beobachtet.

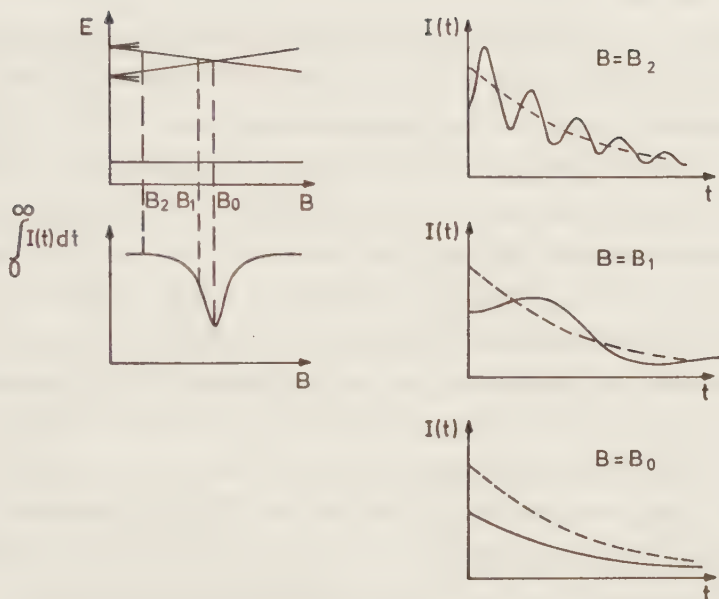


Abb.8: Level-Crossing Methode

In einem Level-Crossing Experiment wird das Magnetfeld bestimmt, bei dem sich Zeeman-Unterniveaus überschneiden. Das Level-Crossing Signal kann als ein integriertes Quantum-Beat Signal aufgefaßt werden. Links oben: Die Aufspaltung der beiden Zeeman-Niveaus ist magnetfeldabhängig.

Die zu den Aufspaltungen bei den Magnetfeldern B_0, B_1, B_2 gehörigen Quantum-Beat Signale sind rechts dargestellt. Links unten ist ein Level-Crossing Signal abgebildet. Nur wenn die Quantum-Beat Periode größer als die Lebensdauer ist, wird bei Variation des äußeren Magnetfeldes eine Signaländerung beobachtet.

Diese Beschreibung gilt bei gepulster Anregung. Der Anregungszeitpunkt der Atome ist bei der zeitintegrierten Beobachtung aber nicht wesentlich. Deshalb kann das Level-Crossing Signal auch bei kontinuierlicher Anregung mit einer klassischen Lichtquelle beobachtet werden, da sich inkohärentes Licht aus statistisch verteilten Lichtpulsen zusammensetzt und die Beobachtung zeitintegriert erfolgt.

Das Level-Crossing Signal kann als ein zeitlich integriertes Quantum-Beat Signal verstanden werden. Die einer kohärenten Anregung zweier Zeeman-Niveaus folgende Fluoreszenz ist zeitlich moduliert, und die Frequenz dieses Quantum-Beat Signals entspricht dem Abstand der beiden Zeeman-Niveaus und ist daher magnetfeldabhängig (Abb.8). Bei der Beobachtung wird das Signal nur während der mittleren Lebensdauer der Zustände integriert. Ist die Frequenz der Modulation groß, mittelt sich die Modulation innerhalb der Lebensdauer des Zustands heraus. Wenn die Modulationsperiode dagegen größer als die Lebensdauer ist, so ändert sich die zeitintegrierte Fluoreszenzintensität. Eine große Signaländerung ist deshalb an den Stellen wo Niveauüberschnitten liegen zu erwarten, da dort der Energieabstand klein ist und deshalb eine lange Modulationsperiode vorliegt. Aus der Größe des Magnetfelds, bei dem sich Zeeman-Niveaus von verschiedenen Feinstrukturtermen schneiden, kann bei bekannten g-Faktoren auf den Abstand dieser Terme ohne äußeres Magnetfeld zurückgerechnet werden. Wie die Quantum-Beat Methode beruht auch die Level-Crossing Methode auf der Beobachtung von Effekten einer kohärenten Anregung der untersuchten Zustände. Während aber mit der Quantum-Beat Methode Aufspaltungen ΔE nur dann gemessen werden können, wenn Anregungslichtpulse hinreichend kurzer Dauer T zur Verfügung stehen ($T \ll \Delta E$) [12], unterliegt die Level-Crossing Methode nicht dieser Einschränkung. Sie erfordert nur hinreichend große Magnetfelder [35]. Mit der Level-Crossing Methode wurde z.B. die Hyperfeinstruktur von ^{133}Cs $n^2D_{3/2}$ -Zuständen bis $n=18$ gemessen [28].

3. QUANTUM-BEAT METHODE ANGEWENDET AUF RYDBERG-ZUSTÄNDE

Bei der Messung von Aufspaltungen von Rydberg-Zuständen mit der Quantum-Beat Methode, läßt sich weder die Methode der Beobachtung der Fluoreszenz noch die der Beobachtung der Absorption zu einem gebundenen Zustand anwenden, da einerseits aufgrund der Lage der Rydberg-Zustände dicht unterhalb der Ionisationsgrenze keine mit Lichtpulsen erreichbaren höheren gebundenen Zustände existieren, andererseits eine Beobachtung der Fluoreszenz bei hohen Hauptquantenzahlen n schwer möglich ist. Es bleiben zwei Möglichkeiten, die im folgenden diskutiert werden.

a) Der Beobachtungspuls ist ein Lichtpuls, der das Atom photoionisiert, wobei man eventuell vorhandene autoionisierende Zustände zur Erhöhung der Signalintensität benutzen kann.

b) Zur Beobachtung der Quantum-Beats wird ein elektrischer Feldpuls (Stark-Puls) angelegt, so daß über Feldemission frei werdende Elektronen beobachtet werden können.

Zum Fall a) wurden Rechnungen durchgeführt, deren Ergebnisse darauf schließen lassen, daß eine Beobachtung von Quantum-Beats in der Photoionisation möglich ist /36/. Experimentell ergibt sich die Schwierigkeit, daß aufgrund der kleinen Aufspaltungen der Rydberg-Zustände in der Größenordnung von einem MHz Verzögerungszeiten zwischen den Lichtpulsen bis zu mehreren Mikrosekunden benötigt werden.

Zum Fall b) wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit Experimente durchgeführt, die zeigen, daß Quantum-Beats im Feldelektronenstrom beobachtet werden können /34/.

wie bei den oben beschriebenen Methoden wird auch bei den im Feldelektronenstrom beobachteten Quantum-Beats durch einen kurzen Laserpuls eine kohärente Superposition zweier dicht benachbarter Zustände nahe der Ionisationsgrenze angeregt. Durch ein verzögert eingeschaltetes elektrisches Feld wird das Coulomb-Potential verzerrt $V = -e/(4\pi\epsilon_0 r) - Fz$ (Abb.9). Nach rein klassischen Überlegungen beträgt die Absenkung der Ionisationsgrenze in Richtung des elektrischen Feldes $\Delta V = -2\sqrt{eF/(4\pi\epsilon_0)}$. Zustände, deren Energie oberhalb dieser Grenze liegen, werden vollständig ionisiert. Die Zustände unterhalb dieser Grenze sind nicht stationär, da für sie eine endliche Wahrscheinlichkeit besteht durch den Potentialberg zur Anode zu tunneln. Auf das Problem der Feldionisation wird im folgenden Kapitel näher eingegangen. Im Experiment wird die Amplitude des elektrischen Feldpulses so eingestellt, daß die angeregten Zustände kurz unterhalb der abgesenkten Ionisationsgrenze liegen und schon eine hohe Tunnelwahrscheinlichkeit besitzen (Abb.10). Die Zahl der so emittierten Elektronen zeigt als Funktion der Zeit zwischen Anregungs- und Feldionisationspuls eine periodische Variation. Diese Modulation entspricht der Aufspaltung der beiden kohärent angeregten Zustände.

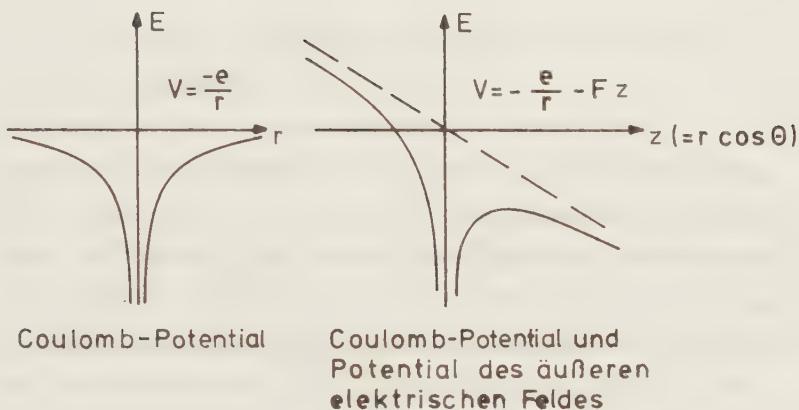


Abb.9: Durch ein äußeres elektrisches Feld wird das Coulomb-Potential verzerrt. Für 500V/cm ist die Absenkung der Ionisationsgrenze ca. 10^{-2} eV. Dabei ist θ der Winkel zwischen dem Radiusvektor r und der Richtung des elektrischen Feldes (z -Richtung). Befindet sich das ungestörte Atom in einem hochangeregten Zustand der Energie E ($E < 0$), so wird es durch Einschalten eines elektrischen Feldes ionisiert, wenn die Absenkung der Ionisationsgrenze $|\Delta V| = 2\sqrt{eF/(4\pi\epsilon_0)}$ größer als $\frac{1}{2}|E|$ ist. Auch Zustände, die unterhalb der abgesenkten Ionisationsgrenze liegen, besitzen aufgrund des Tunneffekts eine endliche Ionisationswahrscheinlichkeit.

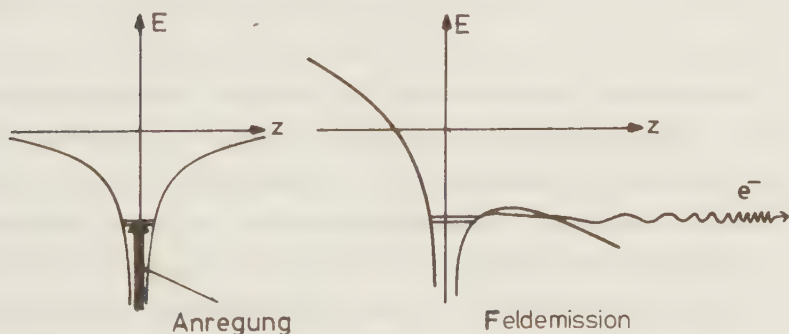


Abb.10: In einem Quantum-Beat Experiment bei Beobachtung der Feldionisation wird die Amplitude des elektrischen Feldpulses so eingestellt, daß die kohärent angeregten Zustände kurz unterhalb der abgesenkten Ionisationsgrenze liegen und das Feldionisationssignal 10-50% des maximalen Sättigungssignals beträgt.

3.1. Feldemission von Rydberg-Atomen

Der im letzten Kapitel diskutierte Sachverhalt über Feldionisation muß noch etwas genauer dargestellt werden. Die Absenkung der Ionisationsgrenze eines Atoms durch ein äußeres elektrisches Feld hängt nicht nur von der Feldrichtung, sondern auch von der Richtungsquantenzahl m eines Zustands ab. Unter Verwendung von polarisiertem Licht bei der Anregung können einzelne m -Unterniveaus selektiv angeregt werden. Ist die Polarisationsrichtung des Lichts parallel zum elektrischen Feld, so wird ein größeres Feldemissionssignal beobachtet als bei senkrechter Einstellung der Polarisation /37/.

Der Hamilton-Operator für das ungestörte Atom $\hat{H}_0$ hat sphärische Symmetrie und die Schrödingergleichung kann nach sphärischen Koordinaten separiert werden. Nimmt man die Störung durch das äußere elektrische Feld hinzu, $\hat{H} = \hat{H}_0 - eF\hat{z}$, so hat der Hamilton-Operator nur noch Zylindersymmetrie. Die zugehörige Schrödinger-Gleichung läßt sich nach parabolischen Koordinaten separieren /38/. Durch die Aufhebung der sphärischen Symmetrie sind die neuen Eigenzustände keine Drehimpulseigenzustände mehr. Nur noch die Projektion des Bahndrehimpulses auf die Symmetrieachse ist eine Erhaltungsgröße. Wenn aber im ungestörten Atom die Zustände zu verschiedenen Drehimpulsquantenzahlen entartet sind, wie dies zum Beispiel beim Wasserstoffatom und näherungsweise bei hochliegenden Rydberg-Zuständen der Fall ist, läßt sich auch die Schrödinger-Gleichung des ungestörten Atoms nach parabolischen Koordinaten separieren. Sowohl die sphärischen als auch

die parabolischen Eigenzustände bilden dann jeweils ein vollständiges Basissystem.

Die Störung der Atome durch das elektrische Feld ist extrem stark, besonders für Zustände nahe der abgesenkten Ionisationsgrenze. Sie kann daher nicht in der Störungstheorie berechnet werden. Abb.11a zeigt die mit der Wentzel-Kramers-Brillouin-(WKB)-Methode errechnete Feldionisationswahrscheinlichkeit für Wasserstoffzustände der Hauptquantenzahl $n=30$ und der Richtungsquantenzahl $m=2$, aufgetragen als Funktion der elektrischen Feldstärke /39/. Die verschiedenen Kurven stellen die Feldionisationswahrscheinlichkeit für verschiedene Werte der parabolischen Quantenzahlen n_1 und n_2 dar ($n_1+n_2+m+1=n$). Die Zustände mit großem n_2 haben niedrigere Energien als diejenigen mit kleinem n_2 , ionisieren aber schneller. Dementsprechend nimmt die Fluoreszenzintensität der von diesen Zuständen ausgehenden Spektrallinien mit wachsendem n_2 ab /40/.

In einem Quantum-Beat Experiment mit Feldionisation wird die Behandlung des Problems einfach, wenn die Einschaltzeit T des Stark-Pulses klein gegen $1/\Delta E$ ist, wobei ΔE die durch das elektrische Feld verursachte Energieverschiebung der Zustände ist. Unter dieser Bedingung ($T < 1/\Delta E$) kann die Störung in der nicht-adiabatischen Näherung beschrieben werden. Die Wahrscheinlichkeit, daß infolge der Störung das Atom von einem Eigenzustand von $\hat{H}_0, |\phi_0\rangle$, in einen Eigenzustand von $\hat{H}, |\phi_1\rangle$, übergeht, wird durch das Überlappintegral $\langle \phi_1 | \phi_0 \rangle$ gegeben. Die in parabolischen Koordinaten beschriebenen Eigenzu-

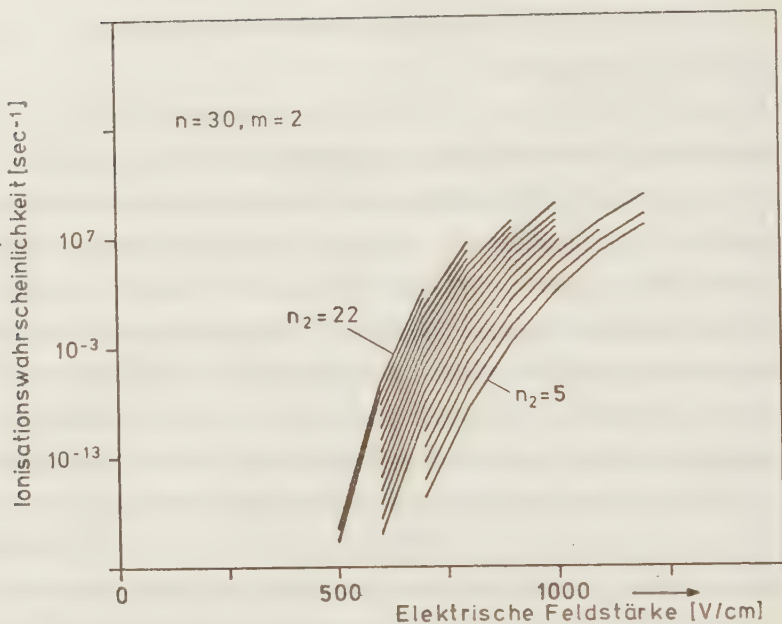


Abb.11a: Feldemission an Wasserstoff (theoretisch). Die Feldionisationswahrscheinlichkeit für $n=30$, $m=2$ und $n_2=5$ bis $n_2=22$ wurde mit der WKB-Methode berechnet und als Funktion des elektrischen Feldes aufgetragen /39/. Experimentelle Messungen werden bei einer Ionisationsrate von 10^5 - 10^8 sec^{-1} durchgeführt. Diese Werte definieren das kritische Feld für einen Zustand; für größere Felder werden Atome in diesem Zustand vollständig ionisiert. Experimentelle Werte für das kritische Feld sind in Abb.11b aufgetragen.

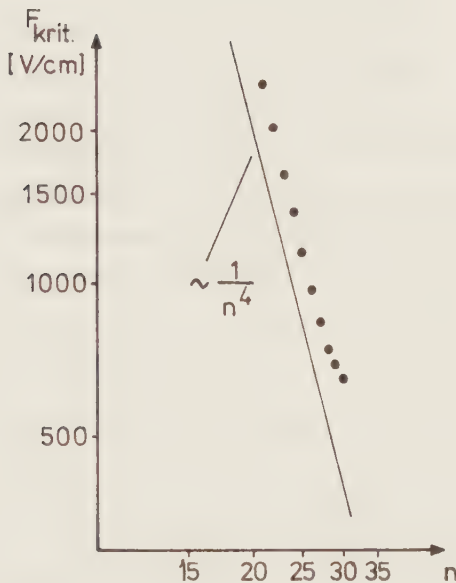


Abb.11b: Feldemission von Natrium Rydberg-Atomen (experimentell).

Die für die Beobachtung der Quantum-Beat Signale in der Feldionisation benutzten Feldstärken (Kap. 5.2) sind gegen die Hauptquantenzahl aufgetragen. Die Gerade repräsentiert den klassischen Wert $F = \pi \epsilon_0 R^2 / e n^4$. Die experimentellen Punkte entsprechen Feldstärken, für die die Ionisationswahrscheinlichkeit der Zustände der Natrium nd-Serie 10^8 sec^{-1} beträgt.

stände von $\hat{H}$ haben eine wohlbestimmbare Ionisationswahrscheinlichkeit (siehe Abb.11).

Sei $\{|a_i\rangle\}_{i=1,\dots,k}$ die in sphärischen und $\{|\alpha_j\rangle\}_{j=1,\dots,k}$ die in parabolischen Koordinaten beschriebene Basis zu einem k-dimensionalen Unterraum von Zuständen mit festen Quantenzahlen n und m, dann kann jeder Zustand $|a_i\rangle$ dargestellt werden als Linearkombination von parabolischen Zuständen $|a_i\rangle = \sum_{j=1}^k C_{ij} |\alpha_j\rangle$. Angenommen in einem Quantum-Beat Experiment wird eine Superposition von zwei sphärischen Zuständen $|a_p\rangle$ und $|a_q\rangle$ angeregt,

$$|\Psi\rangle = A \exp(i\omega_p t) |a_p\rangle + B \exp(i\omega_q t) |a_q\rangle$$

wobei $\hbar\omega_p$ und $\hbar\omega_q$ die durch $\hat{H}_0 |a_p\rangle = \hbar\omega_p |a_p\rangle$ und $\hat{H}_0 |a_q\rangle = \hbar\omega_q |a_q\rangle$ definierten Eigenenergien des ungestörten Hamilton-Operators sind. Durch Einschalten des elektrischen Feldpulses zur Zeit t_0 werden die sphärischen Zustände $|a_p\rangle$ und $|a_q\rangle$ auf die parabolischen Zustände $|\alpha_j\rangle$ projiziert.

$$\begin{aligned} |\Psi(t=t_0)\rangle &= A \exp(i\omega_p t_0) \sum_{j=1}^k C_{pj} |\alpha_j\rangle + B \exp(i\omega_q t_0) \sum_{j=1}^k C_{qj} |\alpha_j\rangle \\ &= \sum_{j=1}^k [AC_{pj} \exp(i\omega_p t_0) + BC_{qj} \exp(i\omega_q t_0)] |\alpha_j\rangle \end{aligned}$$

Zur Vereinfachung sei angenommen, daß außer für $j=1$ die Ionisationswahrscheinlichkeit der $|\alpha_j\rangle$ verschwindend klein und C_{p1} , $C_{q1} \neq 0$ ist.

Die Wahrscheinlichkeit, daß sich das Atom zum Zeitpunkt $t=t_0$ im Zustand $|\alpha_1\rangle$ befindet, ist

$$\begin{aligned} |\langle \alpha_1 | \Psi(t=t_0) \rangle|^2 &= |AC_{p1} \exp(i\omega_p t_0) + BC_{q1} \exp(i\omega_q t_0)|^2 \\ &= |AC_{p1}|^2 + |BC_{q1}|^2 + 2 \operatorname{Re}\{AC_{p1} B^* C_{q1}^* \exp(i(\omega_p - \omega_q) t_0)\} \end{aligned}$$

Dieser Ausdruck multipliziert mit der Ionisationswahrscheinlichkeit für $|a_1\rangle$ ergibt den im Experiment gemessenen Elektronenstrom. Die Überlegung zeigt, daß der Elektronenstrom aufgetragen als Funktion der Verzögerungszeit t_0 zwischen Anregung und Einschalten des Stark-Pulses mit der Frequenz $(\omega_p - \omega_q)$ moduliert ist. Auf diese Weise wird die Aufspaltung der Zustände $|a_p\rangle$ und $|a_q\rangle$ bestimmt.

4. EXPERIMENTELLER AUFBAU

4.1. Frequenzveränderlicher Laser

Die Zustände der nd- und ns- Serie von Na werden stufenweise angeregt (Abb.12). Als Lichtquelle dienen zwei vom selben Stickstofflaser gepumpte Farbstofflaser FL1 und FL2 (Abb.13).

Jeder dieser beiden Farbstofflaser besteht aus einem planen Endspiegel ($R=30\%$), einer Farbstoffzelle, einem Strahlaufweiter (Verhältnis 1:20) und einem Echelle-Gitter. Der Stickstofflaser hat eine Leistung von 1,3MW bei 6ns Pulslänge. Über einen Strahlteiler wird der Laser FL1 mit 8% dieser Leistung gepumpt. Die Pulsdauer der Farbstofflaserpulse beträgt 4ns. Als Farbstoffe werden in FL1 eine 10^{-3} molare Lösung von Rhodamin 6G in Äthanol und in FL2 eine gesättigte Lösung von Diphenyl-Stilben in Dioxan verwendet. Die Linienbreiten der Farbstofflaser betragen 0,2-0,3Å. Über einen Motor, der das Gitter dreht, kann die Wellenlänge des Farbstofflasers FL2 abgestimmt werden. Die Strahlen der beiden Laser werden unter einem Winkel von 5mrad auf einen Atomstrahl fokussiert. Über einen Strahlteiler kann ein Teil der Intensität des Lasers FL1 in eine mit Natrium-Atomen gefüllte Zelle eingestrahlt werden. Durch Beobachtung der Fluoreszenz dieser Atome kann die Wellenlänge dieses Lasers je nach Experiment auf die Natrium D₁- oder D₂-Linie abgestimmt werden. Die Wellenlänge des Lasers FL2 wird mit einem Monochromator gemessen.

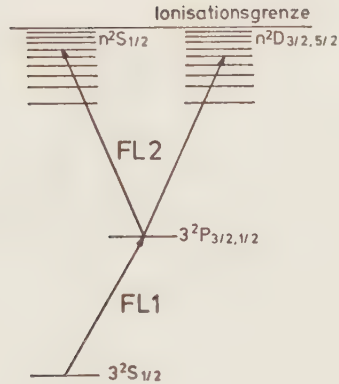


Abb.12: Termschema der untersuchten Rydberg-Serien des Natrium-Atoms.
Die Atome wurden mit dem Licht zweier Farbstofflaser stufenweise angeregt. Je nach Experiment war dabei der Farbstofflaser FL1 in Resonanz mit der D₁- oder der D₂-Linie.

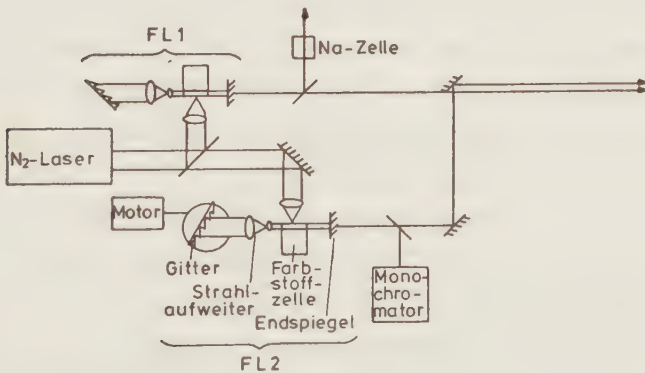


Abb.13: Farbstofflaser
Aufbau der beiden für die Anregung benutzten Stickstofflaser-gepumpten Farbstofflaser. Jeder der Farbstofflaser besteht aus Endspiegel, Farbstoffzelle, Strahlauferweiter und Reflexionsgitter /41/.

4.2. Nachweisapparatur

Der Atomstrahl wird in einem Vakuumgehäuse bei einem Druck von 10^{-7} Torr in einem mit Widerstandsdraht geheizten Ofen erzeugt. Bei einer Heizleistung von 9 Watt erreicht der Atomstrahl Ofen eine Temperatur von 260°C , was einem Na-Dampfdruck im Ofen von 10^{-2} Torr entspricht. Die Austrittsblende des Ofens hat einen Durchmesser von 0,2mm und der Atomstrahl ist im Verhältnis 1:40 kollimiert. Die dazu benötigten Blenden werden mit flüssigem Stickstoff gekühlt, um zu verhindern, daß Na-Atome außerhalb des Blendensystems in den Wechselwirkungsraum gelangen. Der Atomstrahl kreuzt die Laserstrahlen in einem Plattenkondensator, an den ein gepulstes elektrisches Feld angelegt wird, das Atome in hochangeregten Zuständen ionisiert. Die Verzögerung des Feldpulses relativ zum Laserpuls und die Feldamplitude können variiert werden. Die durch den Feldpuls emittierten Elektronen werden beschleunigt und fliegen durch ein Drahtgitter, das über einen Spalt in der positiven Kondensatorplatte gespannt ist, zum Sekundärelektronenvervielfacher (SEV) (Abb.14). Dieser SEV hat bei einer Spannung von 3,5kV eine Verstärkung von 10^8 . Die Kathode des Elektronenvervielfachers liegt auf Erdpotential, und das Signal wird über einen Kondensator von dem Kollektor, der auf Hochspannung liegt, abgekoppelt.

Abb.15 zeigt den zeitlichen Ablauf von Laserpuls, elektrischem Feldpuls und Signal. Zu beachten ist, daß synchron mit dem Laserpuls ein Photoionisationssignal beobachtet wird. Es handelt sich dabei um Natrium-Atome, die in den 3^2P -Zustand angeregt und dann in einem Resonanz-überhöhtem Zwei-Photonen

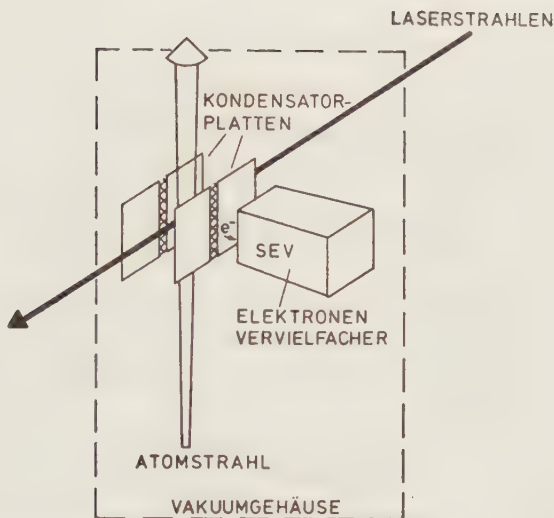


Abb.14: Schema der Anregungszone
Der Abstand der Kondensatorplatten beträgt 10mm, und der Abstand der Kathode des Elektronenvervielfachers von dem feinmaschigen Drahtgitter ist ca. 8mm. Der Ofen und das Blendsystem, mit dem der Atomstrahl kollimiert wird, sind nicht abgebildet.

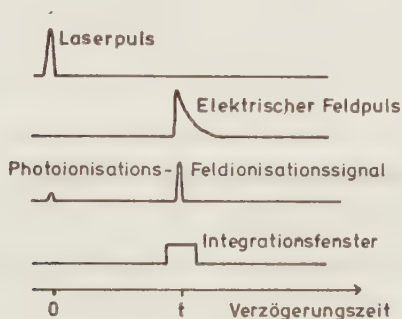


Abb.15: Zeitlicher Ablauf von Laserpuls, elektrischem Feldpuls und Signal.
Synchron mit den anregenden Laserpulsen wird ein Photoionisationssignal beobachtet, das von einer Resonanz-überhöhten Zwei-Photonen-Ionisation vom ^{32}P -Zustand herrührt. Aufgrund des verzögerten elektrischen Feldpulses werden von den Atomen Elektronen emittiert (Feldionisationssignal).

Prozeß photoionisiert werden.

In den weiter unten beschriebenen Experimenten wurden zwei verschiedene Typen von Messungen durchgeführt:

- a) Messungen des Feld- und Photoionisationssignals als Funktion der Wellenlänge des Lasers FL2 bei konstanter Verzögerungszeit.
- b) Messungen des Quantum-Beat Signals mittels der Feldionisation als Funktion der Verzögerungszeit zwischen Laserpuls und elektrischem Feldpuls für eine Reihe von Zuständen.

Abb.16 zeigt ein Schema der experimentellen Anordnung. Mit einem Polarisator und einer $\lambda/2$ -Platte kann die Polarisation des Laserlichts geändert werden. Eine Photodiode, die mit dem Laserlicht bestrahlt wird, dient zur Erzeugung eines Triggerpulses. Für die Messungen vom Typ b) wird dieser Puls proportional zur Kanalzahl des Vielkanalanalysators (VKA) verzögert. (Der VKA läuft im "Multiscaling-Mode".) Zur Erzeugung des verzögerten Impulses startet der Triggerpuls einen Pulsgenerator, der eine Spannungsrampe erzeugt (Abb.17). In einem Komparator wird die schnell ansteigende Spannung der Rampe mit einer der Kanalzahl proportionalen Spannung verglichen. Sind beide Spannungen gleich, so wird ein Ausgangspuls erzeugt, dessen Verzögerung gegenüber dem Photodiodenpuls proportional zur augenblicklichen Kanalposition des VKA ist. Mit diesem verzögerten Puls wird der Hochspannungspulser gestartet. Der Ausgangsimpuls hat eine Amplitude bis zu 2kV mit einer Anstiegszeit von $\approx 0,5\text{ns}$. Die den Abfall des Pulses bestimmende Zeitkonstante beträgt 25ns. Die Amplitude kann bis zu 5% schwanken.

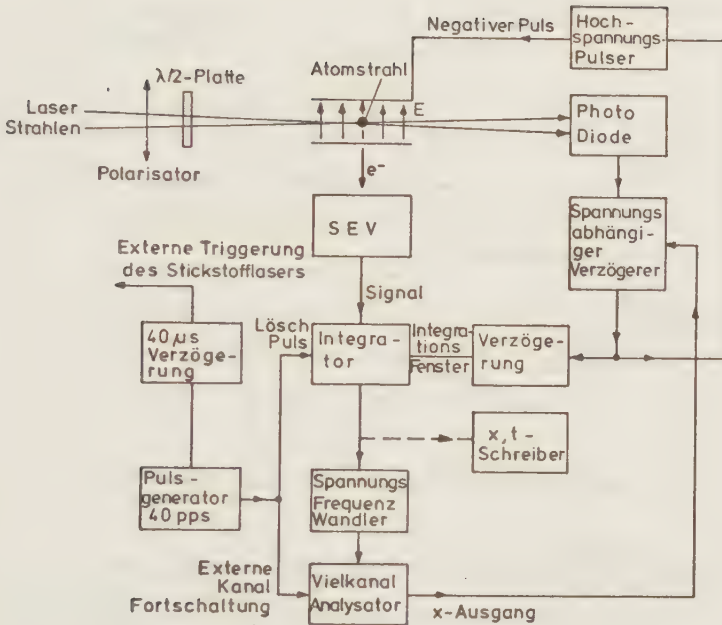
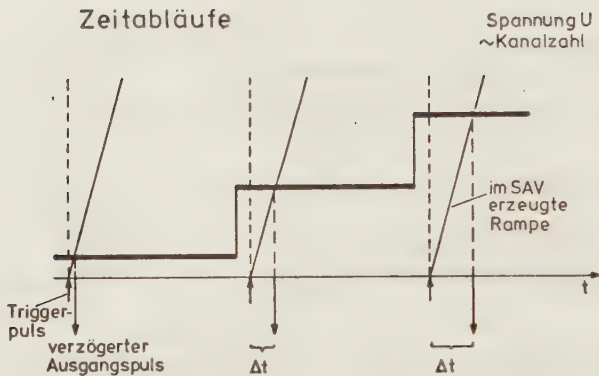


Abb.16: Schematische Darstellung der Nachweisapparatur. Für einen Teil der Messungen wurde das Erdmagnetfeld in der Wechselwirkungszone zwischen Atomstrahl und Laserstrahlen kompensiert. Die dazu benutzten Helmholtz-Spulenpaare sind nicht abgebildet.



Spannungsabhängiger Verzögerer SAV

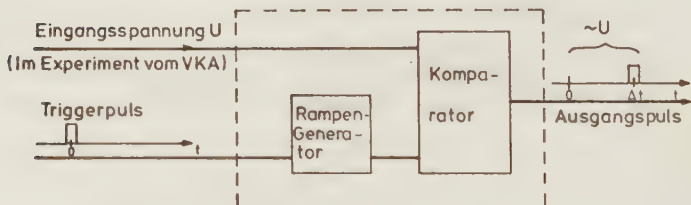


Abb.17: Funktionsweise des spannungsabhängigen Verzögerers (SAV)

Mit einem Triggerpuls wird in einem Pulsgenerator ein Puls mit einer schnell ansteigenden Anstiegsflanke gestartet. Die Anstiegszeit ist variabel ($0,1-10 \mu s$). Die Spannung der Flanke (Rampe) wird in einem Komparator mit einer externen Spannung U verglichen. Wenn beide Spannungen gleich sind, wird ein Ausgangspuls erzeugt. Die Verzögerung Δt dieses Pulses ist proportional U . Im Experiment ist U proportional zur Kanalzahl des Vielkanalanalysators.

Das Signal der Feldelektronen, das im SEV verstärkt wurde, wird während der Dauer von 30ns von einem Integrator integriert. Die analoge Ausgangsspannung des Integrators wird digitalisiert und im VKA abgespeichert. 40µs vor jedem Laserpuls wird der Integrator wieder gelöscht. Die Kanalfortschaltung ist mit den Laserpulsen synchronisiert. Bei einer Pulsrepetitionsrate von 40Hz beträgt die Meßzeit ca. eine Stunde, um für das Quantum-Beat Signal ein ausreichendes Signal-Rauschverhältnis zu erzielen.

Für die Aufnahme des Spektrums einer Rydberg-Serie (Messung Typ a)) wird bei konstanter Verzögerungszeit gemessen. Das Ausgangssignal des Integrators wird von einem x,t-Schreiber aufgezeichnet. Die Wellenlänge des Farbstofflasers FL2 wird mit einem Motor, der das Gitter dreht, geändert.

Der spannungsabhängige Verzögerer (SAV) wird mit einem 250MHz Oszillographen geeicht. Der Fehler der Eichung beträgt 0,5% der maximalen Verzögerungszeit, also 0,02-0,1ns pro Kanal bei 256 benutzten Kanälen. Zur Demonstration der Linearität des SAV wurden Eichmessungen durchgeführt. Die dazu benutzte experimentelle Anordnung ist in Abb.18 schematisch dargestellt. Auf den Eingang eines Integrators wird der Puls eines Pulsgenerators gegeben, dessen Flanke linear in der Zeit ansteigt. Synchron mit dem Anfang dieses Anstiegs wird der SAV gestartet. Der abhängig von der Kanalzahl des Vielkanalanalysators verzögerte Ausgangspuls des SAV bestimmt den Zeitpunkt, an dem der Integrator eingeschaltet wird. Wenn die Dauer des Integrationsfensters kurz gewählt wird, ist die am Ausgang des Integrators liegende

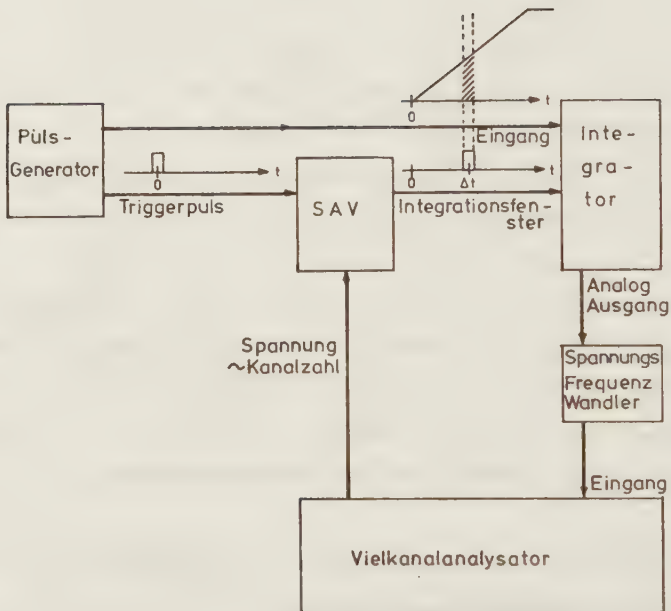


Abb.18: Experimenteller Aufbau zum Test und zur Eichung des spannungsabhängigen Verzögerers (SAV). Auf den Eingang eines Integrators wird die Sägezahnspannung eines Pulsgenerators gegeben. Synchron dazu wird der SAV mit einem Triggerpuls gestartet. Der verzögerte Ausgangspuls bestimmt den Zeitpunkt des Integrationsfensters. Die Dauer wird sehr kurz gewählt. Integriert wird die schraffierte Fläche unter der Spannungsrampe. Die Ausgangsspannung ist dann proportional zu der Verzögerung des SAV. Im Vielkanal wird diese Verzögerungszeit als Funktion der Kanalzahl registriert. Dabei wird die Verzögerung des SAV von einer der Kanalzahl proportionalen Spannung bestimmt.

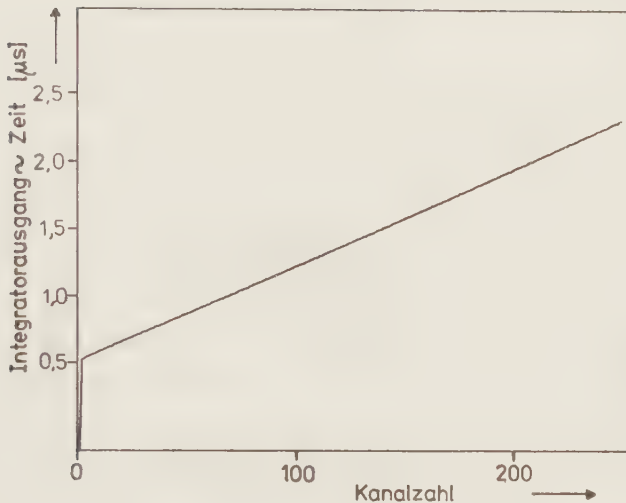


Abb.19: Eichmessung

Mit der in Abb.18 skizzierten Anordnung wurde eine Eichkurve des SAV aufgenommen. Die der Verzögerungszeit des SAV proportionale Ausgangsspannung des Integrators ist aufgetragen als Funktion der Kanalzahl des Vielkanalanalysators. Die dargestellte Kurve ist eine Mittlung über 15 VKA-Durchläufe. Die Abweichungen von der Linearität sind kleiner als 0,3%.

Spannung proportional zur Eingangsspannung und somit proportional zur Verzögerungszeit des SAV. Die Ausgangsspannung des Integrators wird mit dem Spannungsfrequenzwandler digitalisiert und in den Vielkanalanalysator gespeichert. Die so mit dem VKA aufgenommene Kurve zeigt, sofern der SAV linear arbeitet, einen linearen Anstieg mit der Kanalzahl. Die in Abb.19 gezeigte Messung ist das Ergebnis von 15 VKA-Durchläufen. Die hieraus ermittelte Abweichung von der Linearität beträgt 0,3% vom Maximalwert.

5. MESSUNGEN UND ERGEBNISSE

5.1. Spektren von Rydberg-Serien

Über die Messung des Feldionisationssignals als Funktion der Wellenlänge des Lasers FL2 wurden Spektren von ns- und nd-Serien aufgenommen. Je nach Amplitude des elektrischen Feldpulses beginnt die Feldionisation bei Zuständen mit höherem oder niedrigerem n . In Abb.20 sind Spektren für drei verschiedene Feldamplituden dargestellt. Eine Variation der Feldamplitude um weniger als 10% reicht aus, um das Feldionisationssignal von 0 auf 100% zu ändern. Diese kritische Abhängigkeit von der Feldstärke wurde im Kapitel über Feldemission an Atomen bereits diskutiert (Abb.11). Die Linienbreite in diesen Spektren ist durch die Breite der Laserlinie von $0,3\text{\AA}$ bestimmt, was zur Folge hat, daß für $n > 30$ $(n-1)s$ - und nd -Zustände nicht mehr aufgelöst werden. Die Genauigkeit des zur Bestimmung der Laser-Wellenlängen benutzten Monochromators reicht aus, um die tieferliegenden gut aufgelösten Zustände eindeutig zu bestimmen, wodurch jedem Zustand der Serie eine Hauptquantenzahl n zugeordnet werden kann.

Den Spektren ist zu entnehmen, daß auch Zustände, die unterhalb der abgesenkten Ionisationsgrenze liegen, und für die die Tunnelwahrscheinlichkeit verschwindend klein ist, noch ein kleines Signal liefern. Die Elektronen entstehen entweder durch Stoß- oder Photoionisation. In Abb.21 wird ein erheblicher Anteil des Signals durch Stoßionisation verursacht. Zwischen den Ato-

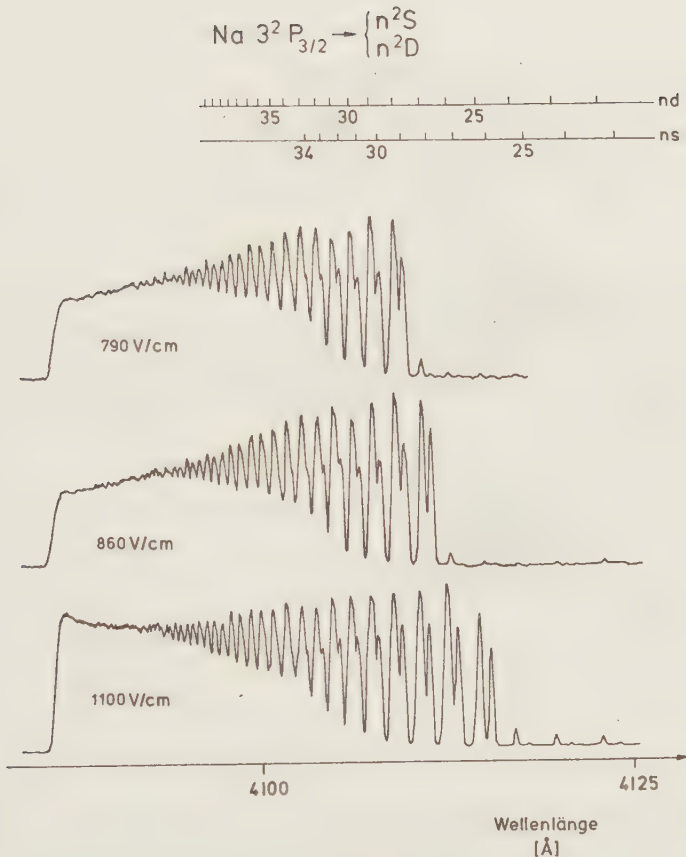


Abb.20: Anregungsspektren

Das Feldionisationssignal der Natrium n^2S - und n^2D -Zustände ist für drei verschiedene Amplituden des elektrischen Feldes als Funktion der Wellenlänge des Lasers FL2 aufgenommen worden. Die Auflösung ist durch die spektrale Breite des anregenden Lichts von ca. $0,3\text{Å}$ begrenzt. Die starke Abhängigkeit des Feldionisationssignals eines Zustands vom elektrischen Feld ist erkennbar. Die angegebene Feldstärke wird durch einen Spannungsimpuls am Plattenkondensator erzeugt.

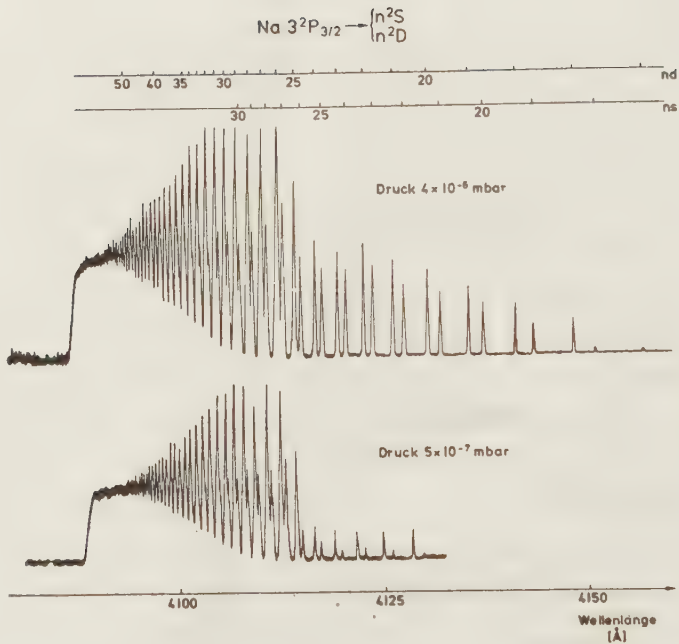


Abb.21: Anregungsspektren

Das Ionisationssignal ist als Funktion der Wellenlänge des Lasers FL2 aufgenommen worden. Die elektrische Feldamplitude ist für beide Kurven ca. 1100V/cm. Die Abhängigkeit des Signals vom Druck in der Vakuum-Apparatur wird demonstriert. Bei höherem Druck wird die mittlere freie Weglänge der Natrium-Atome kleiner und zusätzlich zu dem Feldionisationssignal wird ein Signal aufgrund von Stoßionisation beobachtet. Die zugrunde liegenden Prozesse sind wahrscheinlich Stöße zwischen Natrium Pydberg-Atomen (siehe Text).

men eines Atomstrahls finden zwar keine Stoßprozesse statt, unter dem Einfluß eines schlechten Vakuums aber können zusätzlich Natrium-Atome in die Wechselwirkungszone diffundieren, die durch das Laserlicht ebenfalls angeregt werden. In diesem Fall kann Ionisation durch Stöße zwischen Natrium-Atomen in Rydberg-Zuständen stattfinden, $\text{Na}^* + \text{Na}^* \rightarrow \text{Na} + \text{Na}^+ + \text{e}^-$.

Das obere Spektrum ist bei 4×10^{-6} Torr ohne Kühlung des Blendensystems aufgenommen worden. Das Intensitätsverhältnis zwischen Zuständen unterhalb und oberhalb der abgesenkten Ionisationsgrenze ist 1:2. Die Abnahme der Linienintensität für $n < 20$ ist durch den Abfall der Intensität des Farbstofflasers bestimmt. Durch Kühlen des Blendensystems auf 70 K nimmt dieses Verhältnis innerhalb von 15 min ab auf 1:5. Durch hinreichend langes Kühlen (1-2 Stunden) verschwindet der Effekt der Stoßionisation fast vollständig.

Die Stöße von Rydberg-Atomen untereinander oder mit Restgasmolekülen sind noch nicht untersucht worden. Informationen über Stöße von Natrium Rydberg-Atomen mit Edelgasatomen liegen dagegen bereits vor. Diese Stöße induzieren im wesentlichen Übergänge zwischen Zuständen zu verschiedenen Bahndrehimpuls-Quantenzahlen /2,42/. Die Stoßquerschnitte für diesen Prozeß haben bei $n=10$ ein Maximum und betragen $\sigma(n=10) \approx 10^{-12} \text{ cm}^2$. Für höhere n nehmen sie dann wieder ab. Es kann daraus gefolgert werden, daß auch Stöße mit nichtpolaren Restgasmolekülen nicht zu Stoßionisation, sondern nur zur Vermischung von Rydberg-Zuständen mit verschiedenen Bahndrehimpulsquantenzahlen führen.

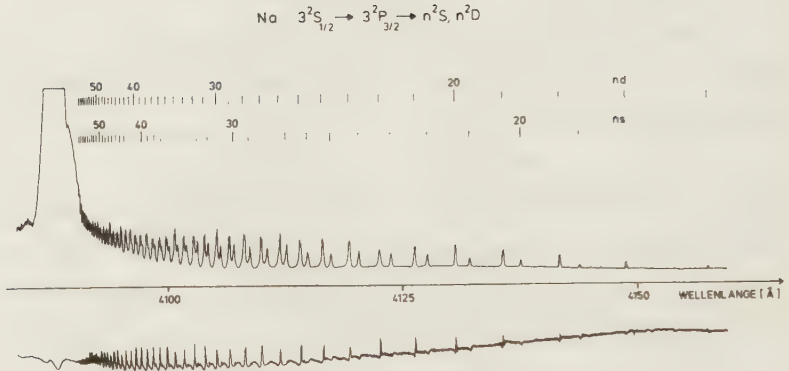


Abb.22: Anregungsspektren

In dem oberen Spektrum ist das Ionisationssignal bei einer Feldamplitude von 30V/cm aufgenommen worden. Das große Signal oberhalb von $n=60$ ist das entsprechende Feldionisationssignal. Das unterhalb von $n=60$ beobachtete Signal entsteht durch Elektronen, die über Stoß- oder Photoionisation emittiert und durch das elektrische Feld abgesaugt werden. Bei dem unteren Spektrum handelt es sich um ein Photoionisationssignal aufgrund von Resonanz-überhöhten Doppelquanten-Übergängen vom $3^2\text{P}_{3/2}$ -Zwischenzustand aus ins Kontinuum (Abb.15). Hierbei lag kein elektrisches Feld an. Aufgrund der Winkelverteilung der Photoionisation wird ein wesentlich größeres Signal von d- als von s-Zuständen beobachtet.

Abb.22 zeigt im oberen Teil ein Spektrum bei einer Feldamplitude von nur 30 V/cm. Der Feldpuls ist wenige Nanosekunden gegenüber dem Laserpuls verzögert. Das große Signal bei $4085\text{\AA}$ ist das entsprechende Feldionisationssignal. Die Linien bei kleineren Wellenlängen können sowohl auf Stoßionisation als auch auf Resonanz-überhöhte Doppelquanten-Übergänge vom $3^2P_{3/2}$ -Zwischenzustand ins Kontinuum zurückgeführt werden. Durch das elektrische Feld werden alle zwischen den Kondensatorplatten entstehenden Elektronen abgesaugt und zum Detektor beschleunigt. Wie in den oben gezeigten Feldemissionsspektren ist das Intensitätsverhältnis von s- und d-Zuständen 1:2.

Es besteht die Möglichkeit, das reine Photoionisationssignal (Abb.15) ohne elektrisches Feld zu messen (unteres Spektrum). In diesem Fall werden nur solche Elektronen beobachtet, die aufgrund der Winkelverteilung der Drei-Photonenionisation zum Detektor gelangen können. Bei dieser Messung stand der Polarisationsvektor der anregenden Laserstrahlen in Richtung auf den Detektor. Bemerkenswert an diesem Spektrum ist, daß praktisch nur d-Zustände auftreten. Die Photoionisation über die s-Zustände ist eine $\cos^2\theta$ -Verteilung, wobei θ der Winkel zwischen Emissionsrichtung und Polarisationsrichtung des Laserstrahls ist. Die Winkelverteilung der Photoionisation über d-Zustände enthält $\cos^n\theta$ -Terme mit geraden Potenzen bis zu $n=6$ /43/. Sie ist also schärfer auf den Detektor gerichtet als bei s-Zuständen. Der Öffnungswinkel zum Detektor beträgt 0,08 Steradian. Außerdem ist die absolute Photoionisationswahrscheinlichkeit über resonante d-Zwischenzustände größer als über s-Zustände.

Werden mit einem Hochfrequenzfeld Übergänge zwischen Rydberg-Zuständen mit verschiedener Bahndrehimpulsquantenzahl induziert, so ändert sich die Winkelverteilung und die Wahrscheinlichkeit der Photoionisation. Die damit verbundene Änderung des Signals am Detektor kann zum Nachweis elektrischer Dipolübergänge, d.h. von Übergängen zwischen Zuständen mit $\Delta l = \pm 1$ benutzt werden. Aus der Aufspaltung können dann Quantendefekte und Feinstrukturaufspaltungen bestimmt werden. Mit der in dieser Arbeit benutzten experimentell weniger aufwendigen Quantum-Beat Methode lassen sich nur Feinstruktur-Abstände mit $\Delta l = 0$ untersuchen. Abstände zwischen Zuständen mit $|\Delta l| \gg 1$ können nicht gemessen werden, da diese Zustände aufgrund der Auswahlregeln nicht von dem gleichen unteren Zustand aus kohärent angeregt werden können.

5.2. Quantum-Beat Messungen an Zuständen der Natrium n^2D -Serie ($n=21$ bis $n=31$) bei Beobachtung der Feldionisation

Wie bereits oben erwähnt, wird bei den hier beschriebenen Messungen das Feldionisationssignal von Natriumatomen in Rydberg-Zuständen als Funktion der Verzögerungszeit zwischen dem anregenden Laserpuls und dem ionisierenden elektrischen Feldpuls (Starkpuls) gemessen. Für den Fall, daß die beiden Feinstrukturniveaus $n^2D_{3/2}$ und $n^2D_{5/2}$ eines d-Zustands kohärent angeregt werden, zeigt das Feldionisationssignal als Funktion der Verzögerungszeit eine periodische Variation, die der Feinstrukturaufspaltung entspricht. Abb.23a zeigt eine Quantum-Beat Messung am 22^2D -Zu-

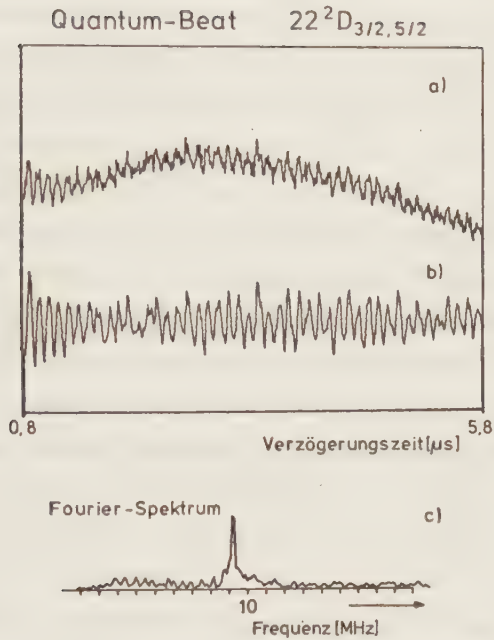


Abb.23: (a) Quantum-Beat Signal vom 22^2D -Zustand.
 (b) Das gleiche Signal nach Abzug des langsamen Anstiegs und Abfalls, die auf die Bewegung der Atome durch das Beobachtungsvolumen zurückzuführen sind.
 Das Fourier-Spektrum von (b) ist in (c) dargestellt.
 Die hieraus bestimmte Aufspaltung $22^2D_{3/2}-22^2D_{5/2}$ ist $9,2 \pm 0,2\text{MHz}$.

stand. Die Zahl der bei jedem Stark-Puls erzeugten Elektronen ist aufgetragen für eine Verzögerungszeit t von $0,8\mu\text{s}$ bis $5,8\mu\text{s}$. Die Amplitude des elektrischen Feldes wurde so eingestellt, daß das Feldionisationssignal 10-50% des Sättigungssignals betrug. Da die thermische Geschwindigkeit der Atome ca. $1\text{mm}/\mu\text{s}$ beträgt, liegt die im Beobachtungszeitintervall zurückgelegte Strecke der Atome schon in der Größenordnung der Abmessungen des Beobachtungsvolumens, worauf der langsame Anstieg und Abfall des Gesamtsignals zurückzuführen ist. Nach der Subtraktion dieses Untergrunds erhält man das in Abb.23b dargestellte Quantum-Beat Signal. Die Modulationsfrequenz läßt sich durch Fourier-Analyse bestimmen. Abb.23c zeigt ein Fourier-Spektrum der in Abb.23b dargestellten Messung. Die Aufspaltungsfrequenz beträgt $9,2 \pm 0,2$ MHz.

Da die Amplitudenschwankungen des bei der Messung benutzten Hochspannungspulvers (EG&G HV100) ca. 5% betragen, ergeben die Schwankungen des Feldionisationssignals wegen der starken Feldabhängigkeit 50% des Maximalsignals. Das bedeutet, nur die Feldemission der Unterzustände mit großen parabolischen Quantenzahlen n_2 wird beobachtet (siehe auch Abb.11). Die Modulationen verschwinden, wenn bei vollem Signal gemessen wird, das Stark-Feld also so groß ist, daß während der Dauer des Stark-Pulses alle angeregten Atome ionisiert werden.

Erste Experimente wurden mit Hochspannungspulsen durchgeführt, die eine Anstiegszeit von $t=20\text{ns}$ hatten. Obwohl $1/t$ groß gegen die Feinstrukturaufspaltung Δv war, konnte kein Quantum-Beat Signal in der Feldionisation beobachtet werden. Dieses Signal

wurde erst beobachtbar bei Verwendung von Hochspannungspulsen mit einer Anstiegszeit von ca. 0,5 ns. Der schnelle Anstieg wurde auch für die Beschreibung der Quantum-Beats in der Feldionisation vorausgesetzt und ermöglicht die Anwendung der nicht-adiabatischen Näherung in Kapitel 3.1.

Zur Überprüfung der Quantum-Beats lassen sich mehrere Tests durchführen. Zunächst sollte das Quantum-Beat Signal verschwinden, wenn nur ein einzelner Rydberg-Zustand angeregt wird. Abb. 24 zeigt einen Vergleich zwischen Messungen an dem 22^2D - und dem 25^2S -Zustand. Der 25^2S -Zustand ist nicht aufgespalten, und es wird auch keine Modulation beobachtet. Wegen der geringen Intensität des Feldionisationssignals von s-Zuständen (Abb. 20), ist die Rauschamplitude bei gleicher Meßzeit größer als bei der Messung des 22^2D -Zustands. Ein einzelner Zustand läßt sich auch anregen, wenn statt des $3^2P_{3/2}$ -Niveaus das $3^2P_{1/2}$ -Niveau als Zwischenzustand gewählt wird. Aufgrund der Auswahlregel $\Delta J = 0, \pm 1$ kann in diesem Falle kein $2^2D_{5/2}$ -Niveau angeregt werden. Das $23^2D_{3/2}$ -Niveau wurde auf diese Weise selektiv besetzt. Abb. 25 zeigt das dabei erhaltene Signal, das nur langsam moduliert ist. Bei dieser Messung war das Erdmagnetfeld nicht kompensiert, und die langsame Änderung des Signals ist auf Quantum-Beats zwischen Zeeman-Unterniveaus zurückzuführen (siehe unten). Werden die Atome im Vergleich dazu über das $3^2P_{3/2}$ -Niveau angeregt, dann kann sowohl das $23^2D_{3/2}$ - als auch das entsprechende $2^2D_{5/2}$ -Niveau besetzt werden; in diesem Fall werden Quantum-Beats beobachtet.

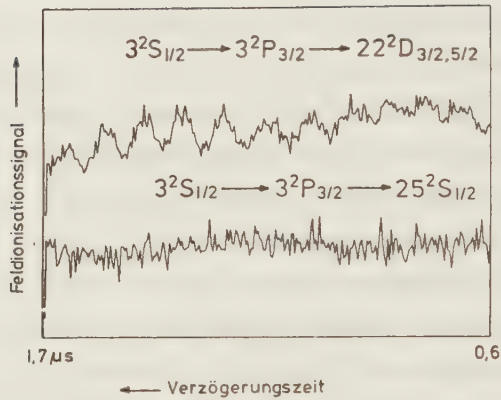


Abb.24: Testmessung an einem $2S_{1/2}$ -Zustand.

Obere Kurve: Quantum-Beat Signal von den $22^2D_{3/2}$ -, $22^2D_{5/2}$ -Zuständen.

Untere Kurve: Die Atome werden in einen $2S$ -Zustand angeregt. Dieser ist nicht aufgespalten und es wird keine Modulation des Feldionisationssignals als Funktion der Verzögerungszeit beobachtet.

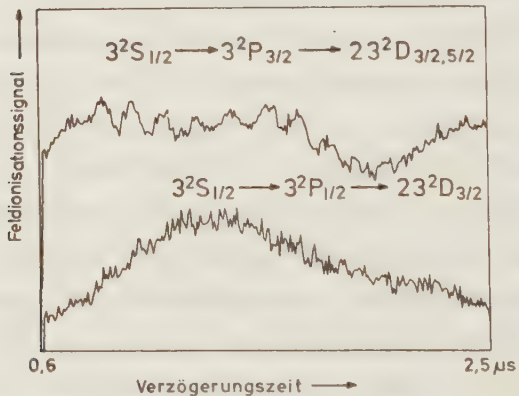


Abb.25: Testmessung mit Anregung über den $3^2P_{1/2}$ -Zustand.

Obere Kurve: Quantum-Beat Signal von den $23^2D_{3/2}$ -, $23^2D_{5/2}$ -Zuständen.

Untere Kurve: Findet die Anregung über den $3^2P_{1/2}$ -Zwischenzustand statt, wird aufgrund der Auswahlregeln $\Delta J=0, \pm 1$ nur ein $2^2D_{3/2}$ -Zustand besetzt, und das Quantum-Beat Signal verschwindet.

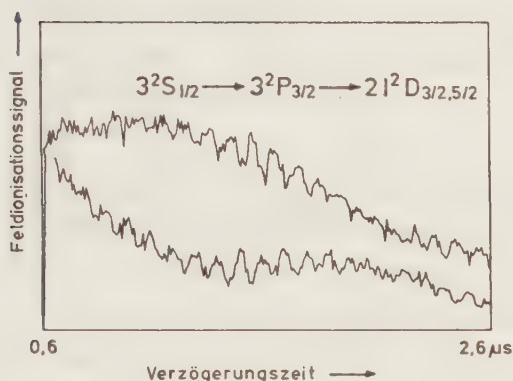
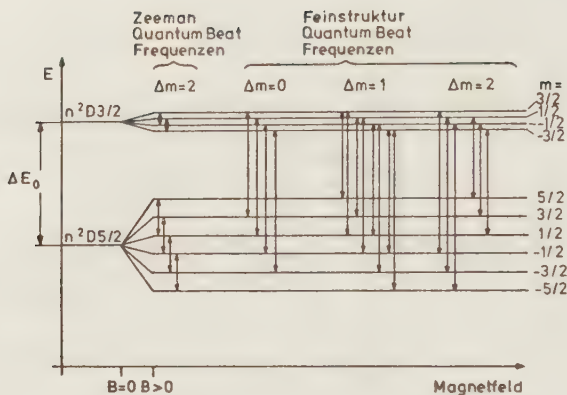


Abb.26: Quantum-Beat Signale von den 2^1D -Zuständen. Bei der oberen Kurve ist die Polarisation des anregenden Lichts senkrecht, bei der unteren parallel zur Richtung des ionisierenden elektrischen Feldes. Es ist deutlich zu erkennen, daß die Phase der Modulation für die beiden Polarisationsrichtungen des anregenden Lichts um 180° verschoben ist.

Ein guter Test der Quantum-Beats ist auch dadurch gegeben, daß sich die Phase der Modulation bei Drehung der Polarisationsrichtung des Laserlichts ändert. Abb.26 zeigt zwei Messungen am 2^1D -Zustand. Die Polarisation der beiden Laser war parallel bzw. senkrecht zum ionisierenden elektrischen Feld. In Übereinstimmung mit den Überlegungen in Kapitel 2.2.5. beträgt die Phasenverschiebung 180° . Bei diesen Messungen war das Erdmagnetfeld nicht vollständig kompensiert. Das Feld betrug noch 0,15 Gauß, was eine entsprechende Zeeman-Aufspaltung zur Folge hat. Durch die gepulste Anregung werden verschiedene Zeeman-Unterniveaus kohärent besetzt. Aufgrund der Zeeman-Aufspaltung treten verschiedene Frequenzen für die quantum-Beats zwischen den Zeeman-



Spektren der Feinstruktur Quantum-Beat Signale

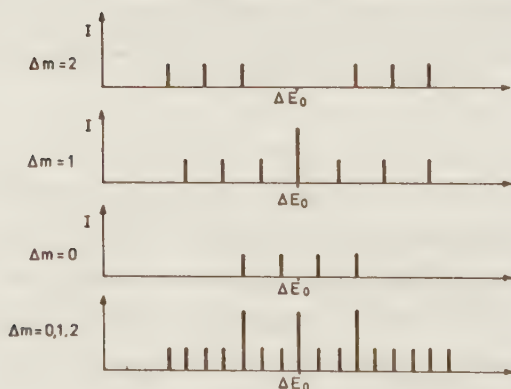


Abb.27: Zeeman-Effekt.

Der obere Teil der Abbildung zeigt die Aufspaltung von $^2D_{3/2}$ - und $^2D_{5/2}$ -Zuständen in einem Magnetfeld. Zeeman-Niveaus, die von einem Zeeman-Niveau des $^2P_{3/2}$ -Zwischenzustands aus kohärent besetzt werden können, sind durch Linien verbunden. Diese Abstände können bei geeigneter Wahl der Laserpolarisation im Experiment als Quantum-Beat Frequenz beobachtet werden. Im unteren Teil sind die für die verschiedenen Polarisationen des anregenden Lichts mögliche Spektren für Quantum-Beat Signale zwischen verschiedenen Feinstrukturzuständen dargestellt (Anregung linear polarisiert parallel zu $\vec{B}$: $\Delta m = 0$, senkrecht zu $\vec{B}$: $\Delta m = 2$, 45° zu $\vec{B}$: $\Delta m = 0, 1, 2$).

Niveaus der gleichen und der verschiedenen Feinstruktur-niveaus auf (Abb.27). Letzteres führt zu einer zusätzlichen Schwebung. Die Phasenverschiebung um 180 Grad ist für beide Quanten-Beat Signale (kurze und lange Periode) beobachtbar.

Abb.28 zeigt eine Serie von Messungen an den Natrium n^2D -Zuständen mit $n=21$ bis 29. Dabei wurde die Verzögerungszeit zwischen Laser- und Stark-Puls von 0,5 bis 2,5 μs variiert. Aufgrund eines restlichen Magnetfelds von ca. 100 mGauß treten mehrere Quanten-Beat Frequenzen auf, was auch aus den Fourier-Spektren dieser Messungen in Abb.29 zu entnehmen ist. Das relativ große Magnetfeld beruht auf einem Fehler bei der Erdfeldkompensation, der auf Inhomogenitäten des Magnetfelds zurückzuführen ist. Darauf wird weiter unten näher eingegangen.

Bei diesen Messungen war neben dem störenden Restmagnetfeld auch noch ein gewisser Natrium-Partialdruck in der Apparatur vorhanden. 20% des Feldionisationssignals stammte von diesen Natrium-Atomen und nur 70% von Atomen aus dem Atomstrahl. Die Folge davon sind Stöße angeregter Atome mit Grundzustands-Natrium-Atomen und Restgasatomen, die zwar die Zahl der angeregten Natrium-Atome nicht verringern, aber die Kohärenz zwischen den beiden 2D -Feinstruktur-Niveaus zerstören können. Da die Stoßquerschnitte mit dem Quadrat des Radius r der Elektronen-Ladungsverteilung im Atom anwachsen und $r^2 \sim n^4$ ist, macht sich dieser Effekt besonders für die hohen Hauptquantenzahlen $n=26$ bis 29 bemerkbar. Zur Überprüfung dieser Erklärung wurde am $n=22$ Niveau eine Messung durchgeführt, die sich über 4 μs statt über 2 μs erstreck-

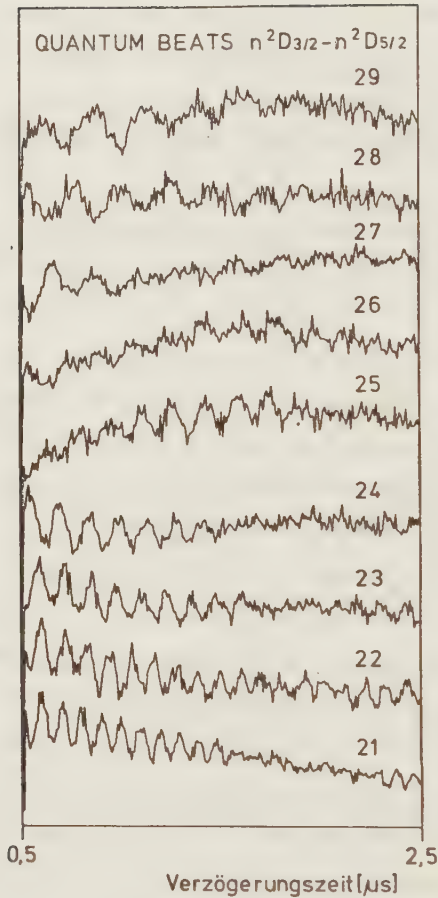


Abb.28: Quantum-Beat Signale der $n^2D_{3/2,5/2}$ -Niveaus für $n=21$ bis $n=29$.

Aufgrund eines nicht kompensierten Anteils des Erdmagnetfelds von 100 mGauß treten Schwebungen zwischen verschiedenen Quantum-Beat Frequenzen auf. Zusätzlich wird durch interatomare Stöße die Kohärenz zwischen den beiden Feinstrukturzuständen zerstört, was zur Folge hat, daß die Amplitude des Quantum-Beat Signals schneller abnimmt als das Gesamtsignal. Mit zunehmendem n werden die Stoßquerschnitte größer, die mittleren freien Weglängen also kleiner.

FOURIER-SPEKTREN

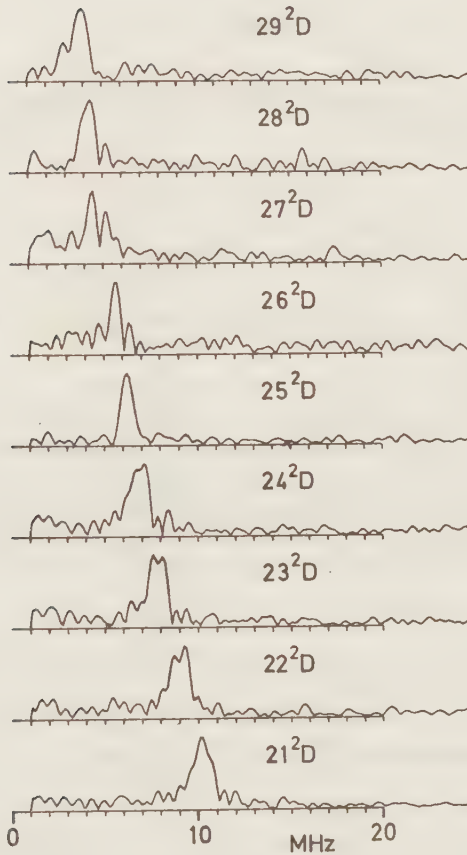


Abb.29: Fourier-Spektren der Meßkurven von Abb.28.
Die verschiedenen, von der Zeeman-Aufspaltung der
Zustände herrührenden Frequenzen deuten sich an.

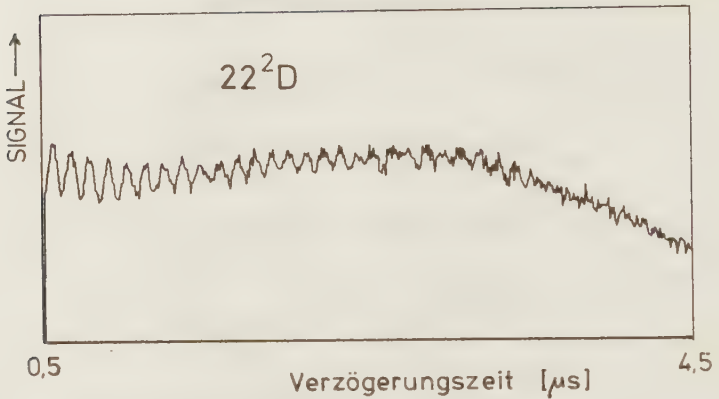


Abb.30: Zerfall der Kohärenz durch Stöße.
Quantum-Beat Signal von den $22^2D_{3/2,5/2}$ -Zuständen.
Die Messung wurde unter den gleichen Bedingungen
wie die Messungen aus Abb.28 durchgeführt. Die
Verzögerungszeit aber wurde über einen doppelt so
großen Bereich variiert ($4\mu s$). Der Einfluß der
Stöße auf die Kohärenz der beiden Feinstrukturzu-
stände wird demonstriert. Das Quantum-Beat Signal
nimmt schneller ab als das Gesamtsignal.

te. In Abb.30 ist deutlich zu erkennen, daß die Modulation hier
ebenfalls ausklingt. Das ist ein Beispiel dafür, daß Phasen-
und Energierelaxation nicht gleich schnell sein müssen.

Abb.31 zeigt eine Meßreihe, bei der der nicht kompensierte An-
teil des Lrdmagnetfelds ebenfalls ca. 100 mGauß beträgt. Wie be-
reits oben erwähnt, liegt die Ursache hierfür in Inhomogenitä-
ten des Magnetfelds, die weiter unten erklärt werden. Mehr als
 95% des Feldionisationssignals stammt von Natrium-Atomen des
Atomstrahls. Dies wurde durch Abdecken des Atomstrahls überprüft.

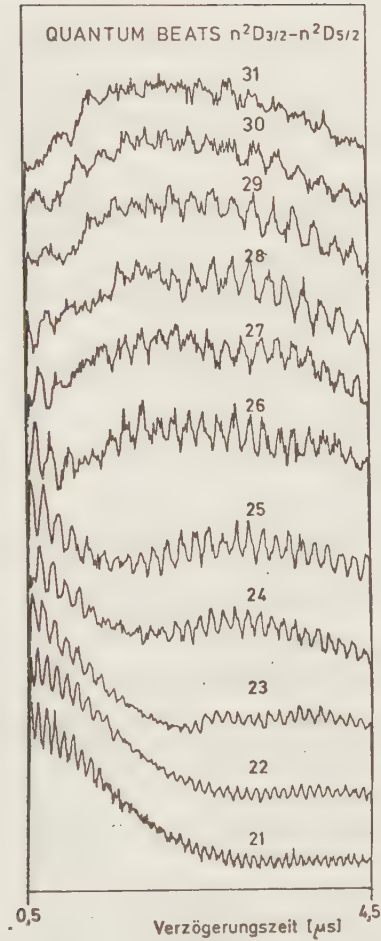


Abb.31: Quantum-Beat Signale der $n^2D_{3/2,5/2}$ -Zustände mit $n=21$ bis $n=31$.
Die langsame Variation des Gesamtsignals ist auf die Bewegung der Atome durch das Beobachtungsvolumen und auf Quantum-Beat Signale von Zeeman-Niveaus des gleichen Feinstrukturzustands zurückzuführen.

Obwohl der Verzögerungshub bei diesen Messungen $4\mu\text{s}$ beträgt, ist ein Ausklingen der Modulation nicht erkennbar. Allerdings ist das Signal-Rausch-Verhältnis für $n=31$ nicht mehr sehr groß.

Ab $n>30$ werden aufgrund der Laserlinienbreite von ca. $0,25\text{\AA}$ mehrere Rydberg-Zustände gleichzeitig angeregt (Abb.20). Die Bewegung der Atome und Quantum-Beats zwischen Zeeman-Niveaus sind für die langsame Änderung des Signals verantwortlich. Abb.32 zeigt die Messungen von Abb.31 nach Abzug des Untergrunds. Diese Kurven wurden für die Fourier-Transformation in Abb.33 benutzt.

Da die natürliche Linienbreite der untersuchten Niveaus in der Größenordnung von einigen kHz liegt, ist die Auflösung nur durch die Beobachtungszeit der Quantum-Beats bestimmt. Gegenüber den Messungen von Abb.28 wurde für die in Abb.31 gezeigte Messung die Meßzeit und damit die Auflösung verdoppelt, sodaß die an der Schwebung beteiligten Frequenzen im Fourier-Spektrum genauer festgelegt werden können.

bei der Interpretation der Messungen in Abb.28 und 31 war zunächst von einem auf weniger als 30 mGauß kompensierten Magnetfeld ausgegangen worden. Ein Feld dieser Größe kann aber die beobachtete Aufspaltung nicht erklären. Eine Abschätzung zeigte, daß die Aufspaltung von 1MHz auch durch ein elektrisches Feld von ca. $0,1\text{V/cm}$ verursacht werden kann. Diese Aufspaltung wurde einem Streufeld des Elektronenvervielfachers zugeschrieben. Die Polarisierbarkeit α von Atomen in Rydberg-Zuständen ist $\sim n^7$.



Abb.32: Quantum-Beat Signale.
Es handelt sich hier um die Messungen aus Abb.31, bei denen die langsame Variation des Gesamtsignals abgezogen wurde, die von Quantum-Beats des gleichen Zeeman-Zustands herrühren.

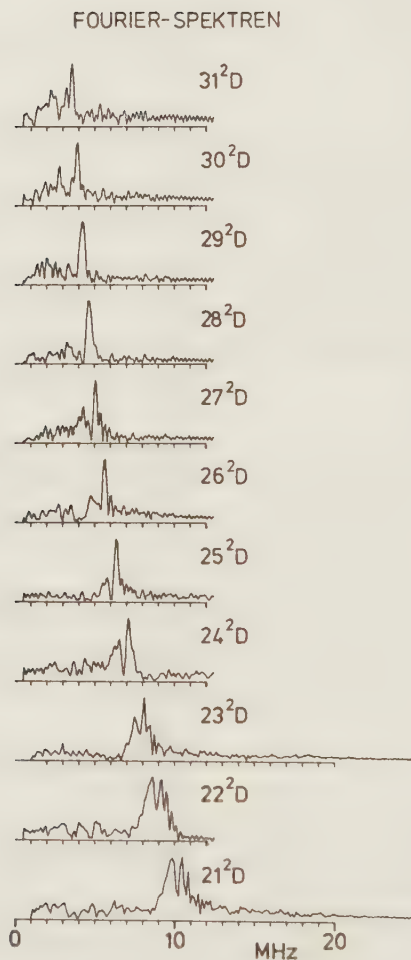


Abb.33: Fourier-Spektren der Kurve aus Abb.31.
Die verschiedenen Frequenzen aufgrund der Zeeman-
Aufspaltung sind zu erkennen.

Diese Formel kann benutzt werden um von der bekannten Polarisierbarkeit des Natrium 16^2D -Zustands /2/ auf die höheren n^2D -Zustände zu extrapolieren. Dabei ergibt sich für $n=21$ eine Polarisierbarkeit von $10\text{MHz}/(\text{V/cm})^2$ und für $n=29$ $100\text{MHz}/(\text{V/cm})^2$. Da die aus den Fourier-Spektren entnehmbare Aufspaltung keine Variation mit der Hauptquantenzahl erkennen läßt, und auch die Position des Elektronenvervielfachers keinen Einfluß auf die Aufspaltung hatte, konnten elektrische Streufelder als Ursache der Aufspaltung ausgeschlossen werden.

Somit stand fest, daß die beobachtete Aufspaltung der Feinstruktur-Zustände einem Magnetfeld von ca. 100 mGauß zugeordnet werden muß. Diese Abweichung von der direkten Messung konnte durch Magnetfelddinhomogenitäten erklärt werden, die auf kleine ferromagnetische Bauteile in der Vakuumapparatur zurückzuführen sind. Es handelte sich dabei z.B. um Stifte in Spannringen und Vakuumventilen sowie um Mikrometerschrauben. Die so verursachten Inhomogenitäten im Magnetfeld ließen eine gute Kompensation des Erdfeldes nicht zu. Die störenden Bauteile wurden durch solche aus nicht magnetischen Materialien ersetzt. Anschließend wurde das Erdmagnetfeld erneut kompensiert.

Abb.34a zeigt Messungen, bei denen das Magnetfeld weniger als 30 mGauß betrug. Hier macht sich die Zeeman-Aufspaltung nicht mehr bemerkbar. Der Beitrag eines Atoms zum Signal hängt aber von seiner Position im elektrischen Feld ab. Der aufgrund der Bewegung der Atome erst langsam ansteigende und dann wieder abfallende Untergrund wurde von dem Signal abgezogen (Abb.34b).

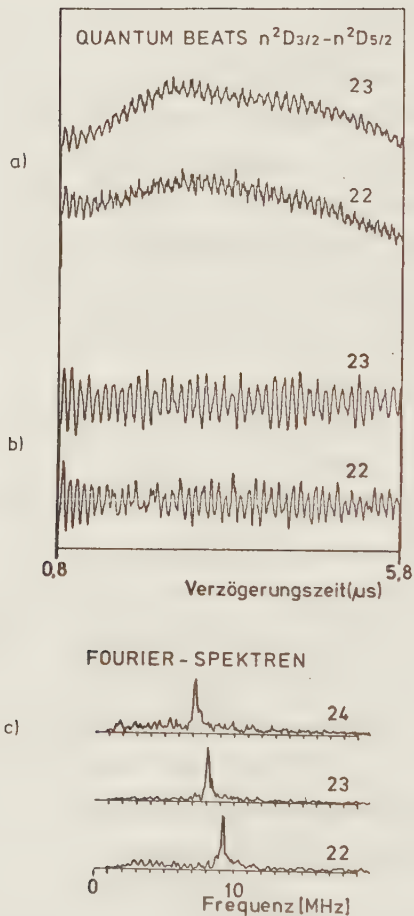


Abb.34: (a) Quantum-Beat Signale bei einem Magnetfeld von weniger als 30 mGauß. Das Gesamtsignal ändert sich zeitlich, da die Atome mit einer Geschwindigkeit von ca. 1mm/μs durch das Beobachtungsvolumen fliegen.
 (b) Das gleiche Signal nach Abzug des langsam veränderlichen Gesamtsignals. Der vertikale Maßstab ist gegenüber (a) 2,5-fach vergrößert.
 (c) Fourier-Spektren
 (Das Quantum-Beat Signal von dem 24^2D -Zustand wird in Abb.35 gezeigt.)

Das nunmehr um Null modulierte Quantum-Beat Signal wurde Fourier-transformiert. Die in den Fourier-Spektren beobachtete Linienbreite beträgt 250kHz (Abb.34c). Die Fourier-Spektren sind eine Faltung des Spektrums des ganzen Quantum-Beat Signals mit dem des rechteckigen Beobachtungszeitintervalls. Letzteres hat bei der Beobachtungsdauer von 5µs eine Halbwertsbreite von 200kHz. Die im Experiment beobachtete Linienbreite liegt nur wenig über diesem theoretischen Grenzwert. Die Abweichung des Spannungsabhängigen Verzögerers von der Linearität um $\pm 0,3\%$ verursacht eine Verbreiterung der Linie um $\pm 30\text{kHz}$, wenn die Quantum-Beat Frequenz 10MHz beträgt. Der Fehler aufgrund der Eichung ist dann 50kHz.

Der Effekt eines Magnetfelds wird in Abb.35a deutlich demonstriert. Die beiden Kurven stellen Messungen sowohl bei kompensiertem als auch bei nur teilweise kompensiertem Erdfeld dar. Wegen der verschiedenen g_J -Faktoren für das $^2D_{3/2}$ - und das $^2D_{5/2}$ -Niveau treten verschiedene Frequenzen für Quantum-Beat Signale von Zeeman-Niveaus zu verschiedenen Feinstrukturzuständen auf (Abb.27), was zu Schwebungen führt. Die Aufspaltung der Linie deutet sich in dem Fourier-Spektrum in Abb.35b an. Vor Berechnung der Fourier-Transformation wurde erneut der nicht modulierte Anteil des Signals abgezogen.

Da die Aufspaltung der Zustände im Magnetfeld symmetrisch ist, werden auch in einem äußeren Magnetfeld aufgenommene Meßreihen zur Ermittlung der Feinstruktur-Aufspaltungen der $\text{Na } n^2D$ -Zustände herangezogen. Das Ergebnis ist in Tabelle 2 zusammen-

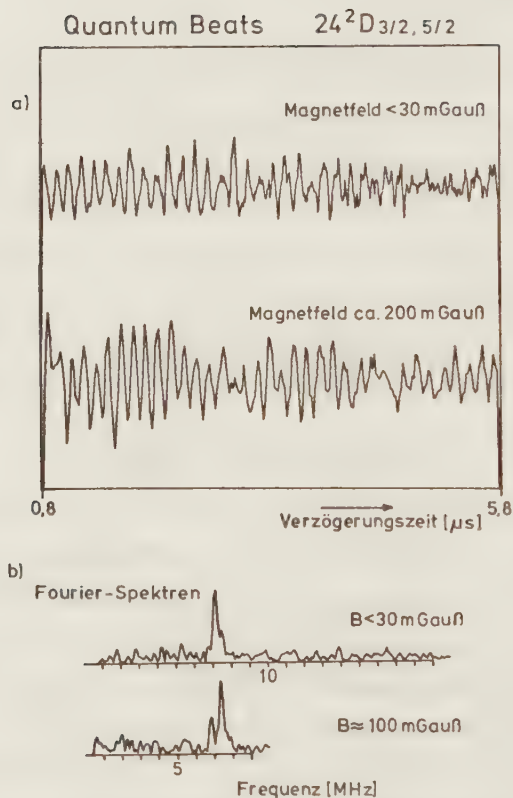


Abb.35: Effekt eines Magnetfelds auf das Quantum-Beat Signal.
 (a) Bei der oberen Kurve ist das restliche Magnetfeld kleiner als 30 mGauß, bei der unteren Kurve ca. 100 mGauß.
 (b) Fourier-Spektren der beiden Signale.

TABELLE 2

NATRIUM n^2D -FEINSTRUKTURAUFSPALTUNGEN

$n =$	$n^2D_{3/2} - n^2D_{5/2}$ [MHz]
21	10,23(25)
22	9,13(10)
23	8,00(10)
24	7,03(10)
25	6,22(10)
26	5,50(30)
27	4,75(30)
28	4,63(30)
29	4,10(30)
30	3,60(50)
31	3,10(50)

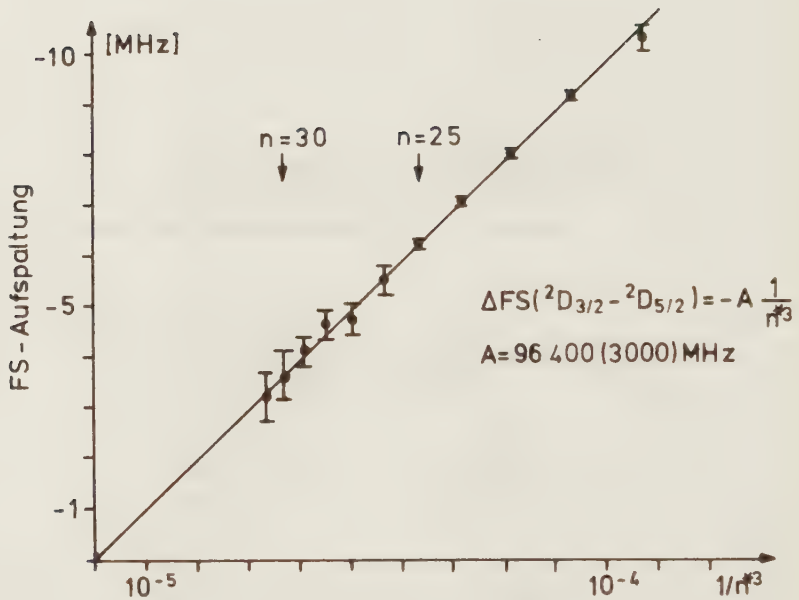


Abb.36: Die experimentell bestimmte Feinstrukturaufspaltung der Na nD -Zustände ist für $n=21$ bis $n=31$ als Funktion von $1/n^{*3}$ aufgetragen ($n^{*}=n-0,014$). An den Zuständen mit $n=21$ und $n=26$ bis $n=31$ wurden nur Messungen bei nicht vollständig kompensiertem Erdmagnetfeld durchgeführt, was den relativ großen Fehler erklärt. Die Ergebnisse stimmen sehr gut mit dem $1/n^{*3}$ -Gesetz überein.

gefaßt und in Abb.36 gegen $1/n^{*3}$ aufgetragen. Die effektive Hauptquantenzahl n^* wurde mit dem bekannten Quantendefekt der Na d-Zustände $\delta_2=0,014$ bestimmt /3/. Die durch eine Geradenanpassung ermittelte Steigung ist $A=96360(3000)\text{MHz}$. Bei diesen Messungen wurde nur die absolute Größe der Aufspaltung, nicht aber das Vorzeichen bestimmt.

Die Wechselwirkung des magnetischen Moments des Atomkerns mit dem Bahn- und Spinmoment des äußeren Elektrons, die zur Hyperfeinstrukturaufspaltung führt, kann bei den Zuständen der Natrium nd-Serie vernachlässigt werden. Die Größenordnung des Verhältnisses von Fein- und Hyperfeinstrukturaufspaltung ist durch den Quotienten aus Protonen- und Elektronenmasse ($\approx 10^3$) gegeben. Dieses Verhältnis ist unabhängig von n , da sowohl Fein- als auch Hyperfeinstrukturaufspaltungen mit wachsendem n proportional zu $1/n^3$ abnehmen. Die Hyperfeinstrukturaufspaltung der ^2D -Zustände ist für Natrium kleiner als die natürliche Linienbreite dieser Zustände /35/ und kann nur bei den schwereren Alkaliatomen beobachtet werden /47/.

Fabre et al. /12/ haben die Aufspaltung der Na $n^2\text{D}$ -Zustände für $n=9$ bis $n=16$ über in der Fluoreszenz beobachtete Quantum-Beats gemessen und die folgende Serienformel aufgestellt:

$$\Delta_{FS} = -A/n^{*3} + B/n^{*5}$$

A und B wurden dabei aus den Aufspaltungen von $n=4$ und $n=9$ berechnet, $A=96500(2000)\text{MHz}$ und $B=498500(30000)\text{MHz}$.

Fredriksson et al. /35/ haben Level-Crossing Experimente durchgeführt, in denen die Feinstrukturaufspaltung der Na $n^2\text{D}$ -Zu-

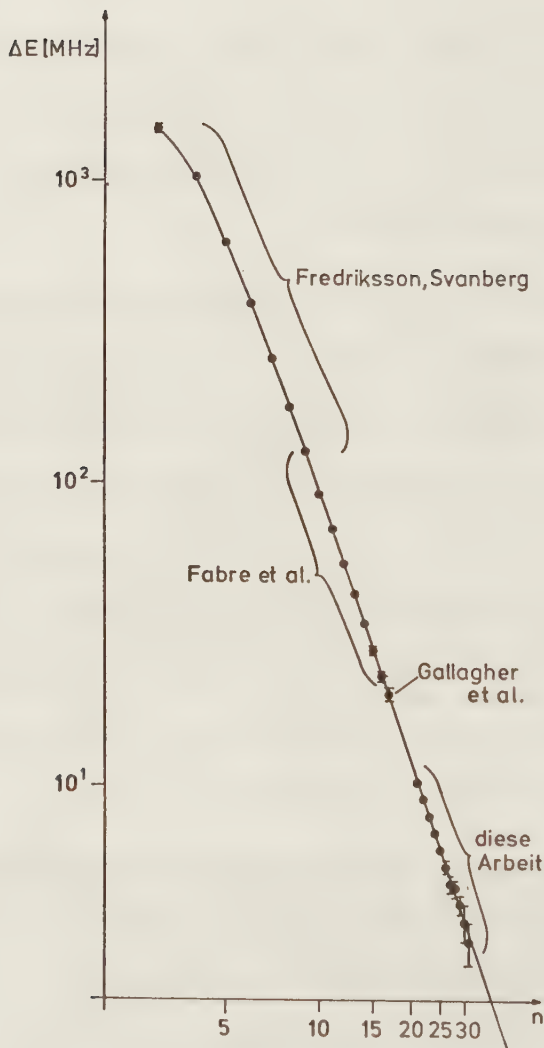


Abb.37: Feinstrukturaufspaltung der Zustände der n^2D -Serie von Natrium.
Die Ergebnisse dieser Arbeit werden mit den Ergebnissen von Fredriksson et al. /35/, Fabre et al. /12/ und Gallagher et al. /2/ verglichen.

stände von $n=4$ bis $n=9$ gemessen wurden.

Die aus diesen Ergebnissen extrapolierten Werte für $n=21$ bis $n=31$ stimmen mit den in der vorliegenden Arbeit gemessenen Werten gut überein. Der $1/n^5$ -abhängige Term, der für die Aufspaltung bis $n=16$ berücksichtigt werden muß, spielt ab $n=20$ keine Rolle mehr.

Zur Demonstration dieser Tatsache sind in Abb.37 alle bisher gemessenen Feinstrukturaufspaltungen der Natrium n^2D -Zustände in doppelt logarithmischem Maßstab gegen die effektive Hauptquantenzahl n^* aufgetragen. Für $n>10$ ergibt sich eine Gerade der Steigung $-2,94(6)$, was zeigt, daß für $n>10$ das $1/n^3$ -Gesetz die Feinstrukturaufspaltung gut beschreibt. Für $n<10$ wird die Kurve nichtlinear, was auf den Einfluß des $1/n^5$ -abhängigen Terms zurückzuführen ist. Aus den Werten für $n=4$ und $n=23$ wurden die A und B Koeffizienten neu bestimmt: $A=97800(1100)\text{MHz}$ und $B=519000(11000)\text{MHz}$.

Das Vorzeichen einer Aufspaltung kann aus einem Quantum-Beat Signal im allgemeinen nicht ermittelt werden. Für die Natrium $n^2D_{3/2,5/2}$ -Zustände ist es aber möglich das Vorzeichen der Feinstrukturaufspaltung durch Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes zu bestimmen, denn durch den höher liegenden nf -Zustand wird die Energie des $^2D_{5/2}$ - stärker als die des $^2D_{3/2}$ -Zustands abgesenkt. Fabre et al. haben entsprechende Messungen für $n=10$ und $n=11$ durchgeführt. Da die Frequenz des Quantum-Beat Signals mit Feld größer war als ohne, liegt der $^2D_{5/2}$ - tiefer als der $^2D_{3/2}$ -Zustand. Aufgrund der Kontinuität in der Größe der Auf-

spaltung (Abb.37) kann angenommen werden, daß die Aufspaltung auch für $n=21$ bis $n=31$ invertiert ist.

6. SCHLUSSBEMERKUNG

Zum Abschluß der Arbeit ist es interessant, die Feinstrukturaufspaltung der Natrium n^2D -Zustände im Zusammenhang mit den Aufspaltungen der n^2D -Serien der anderen Alkali-Atome zu sehen. In Abb.38 ist der mit n^3 multiplizierte Abstand der $n^2D_{3/2}$ - $n^2D_{5/2}$ -Feinstruktur-Niveaus als Funktion von n aufgetragen. Entsprechend dem $1/n^3$ Gesetz sollten die Kurven horizontale Geraden sein. Besonders für Natrium, Kalium und Rubidium sind die Abweichungen davon offensichtlich. Bei Natrium und Kalium sind alle Dubletts invertiert, bei Rubidium nur der 4^2D -Zustand. Interessant ist, daß die Aufspaltung Δ_{FS} für große n proportional zu $1/n^3$ ist, die Aufspaltungen also Wasserstoff-ähnlich werden. In allen Fällen läßt sich die Aufspaltung durch die Formel $\Delta_{FS} = A/n^3 + B/n^5$ beschreiben.

Da die Aufspaltungen aller Alkali n^2P -Zustände dem $1/n^3$ Gesetz sehr gut folgen, erhebt sich die Frage, ob auch die Aufspaltungen der n^2F -Zustände Anomalien aufweisen. Es ist bekannt, daß die Aufspaltung der tiefliegenden n^2F -Zustände von Rubidium und Cäsium invertiert ist /5/, was durch neuere Messungen bis $n=13$ bestätigt wurde /44,45,47/. Für Natrium dagegen stimmen die Werte selbst in ihrer absoluten Größe sehr gut mit den Aufspaltungen der entsprechenden Wasserstoff-Zustände überein /26,46/.

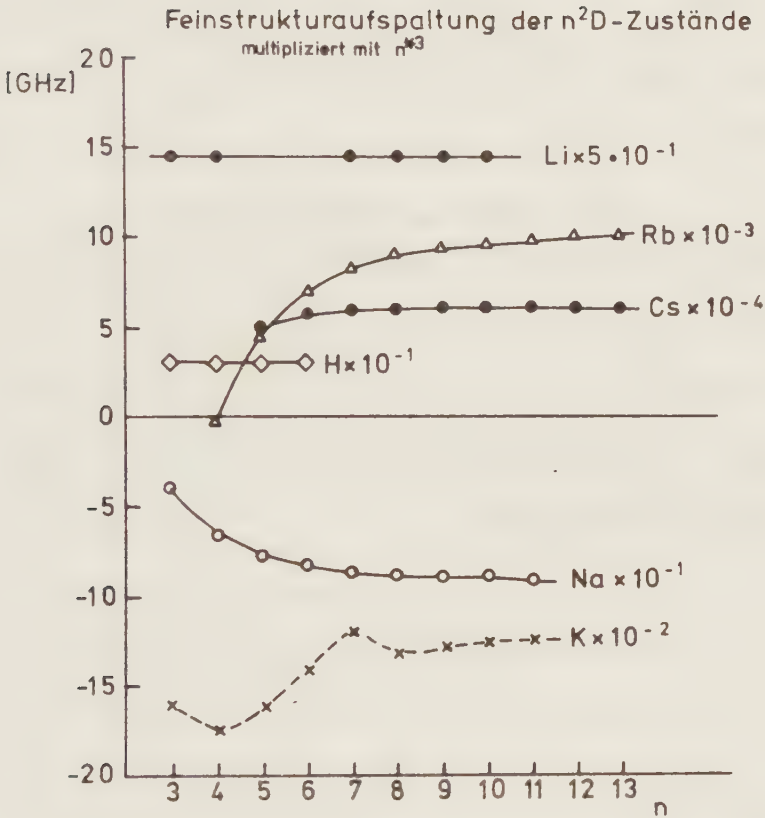


Abb.38: Vergleich zwischen den Feinstrukturaufspaltungen der n^2D -Serien der Alkali-Atome. Für Lithium wurden die gleichen Werte wie für Wasserstoff gemessen. Im asymptotischen Verhalten für $n \rightarrow \infty$ sind die Aufspaltungen proportional $1/n^3$. (Aus [44], unter Berücksichtigung der neueren Werte von [9/,10/]).

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, bestehen noch Diskrepanzen zwischen experimentellen Ergebnissen und theoretischen Berechnungen. Es handelt sich dabei durchweg um systematische Abweichungen /17,18/.

Ein entsprechendes Studium von Feinstrukturaufspaltungen von Rydberg-Zuständen in Zwei-Elektronen-Spektren ist deshalb sehr interessant, denn das asymptotische Verhalten der Aufspaltungen kann in diesem Fall zusätzlich durch doppelt angeregte Zustände gestört sein. Auch diese Messungen können mit der hier beschriebenen Methode durchgeführt werden. Die daraus zu erhaltenden Erkenntnisse geben sicherlich weitere wichtige Hinweise auf Eigenschaften der Rydberg-Atome.

LITERATURVERZEICHNIS

- / 1/ T.F.Gallagher, S.A.Edelstein, R.M.Hill, Rhys.Rev.A 15,
1945 (1977)
- / 2/ T.F.Gallagher, L.M.Humphrey, R.M.Hill, W.E.Cooke,
S.A.Edelstein, Phys.Rev.A 15, 1937 (1977)
- / 3/ C.Fabre, P.Goy, S.Haroche, J.Phys.B 10, L183 (1977)
- / 4/ R.T.Hawkins, W.T.Hill, F.V.Kowalski, A.L.Schawlow,
S.Svanberg, Phys.Rev.A 15, 967 (1977)
- / 5/ C.E.Moore, Atomic Energy Levels, National Bureau of
Standards, Washington (1949,1952,1958)
- / 6/ R.W.Solarz, C.A.May, L.R.Carlson, E.F.Worden, S.A.Johnson,
J.A.Paisner, L.J.Radziemski, Phys.Rev.A 14, 1129 (1976)
- / 7/ J.C.Slater, Quantum Theory of Atomic Structure Vol I,
McGraw Hill, New York 1960
- / 8/ R.L.Smith, T.G.Eck, Phys.Rev.A 2, 2179 (1970)
- / 9/ G.Leuchs, Diplomarbeit, Köln 1975
- /10/ W.E.Cooke, T.F.Gallagher, R.M.Hill, S.A.Edelstein
Phys.Rev.A 16, 1141 (1977)
- /11/ K.Fredriksson, H.Lundberg, S.Svanberg, Z.Physik A 283,
227 (1977)
- /12/ C.Fabre, M.Gross, S.Haroche, Opt.Comm.13,393 (1975)
- /13/ C.D.Harper, M.D.Levenson, Phys.Lett.56A, 361 (1976)
- /14/ Y.Kato, B.P.Stoicheff, J.Opt.Soc.Am.66, 490 (1976)
- /15/ K.C.Harvey, B.P.Stoicheff, Phys.Rev.Lett.38, 537 (1977)
- /16/ S.M.Curry, C.B.Collins, M.Y.Mirza, D.Popescu, I.Popescu,
Opt.Comm.16, 251 (1976)
- /17/ E.Luc-Koenig, Phys.Rev.A 13, 2114 (1976)

- /18/ L.Holmgren, I.Lindgren, J.Morrison, A.M.Martensson,
Z.Physik A 276, 179 (1976)
- /19/ C.S.O, G.F.Fülöp, H.H.Stroke, in Vorbereitung
- /20/ U.Brinkmann, J.Goschler, A.Steudel, H.Walther, Z.Physik
228, 427 (1969)
- /21/ R.F.Stebbing, C.J.Latimer, W.P.West, F.B.Dunning,
T.B.Cook, Phys.Rev.A 12, 1453 (1975)
- /22/ H.Walther, Laser Spectroscopy of Atoms and Molecules,
Springer Verlag, Heidelberg 1976
- /23/ K.Shimoda, High Resolution Laser Spectroscopy,
Springer Verlag, Heidelberg 1976
- /24/ W.Hartig, V.Wilke, H.Walther, Opt.Comm.14, 244 (1975)
- /25/ T.W.Hänsch, I.S.Shahin, A.L.Schawlow, Phys.Rev.Lett.27,
707 (1971)
- /26/ T.F.Gallagher, R.M.Hill, S.A.Edelstein, Phys.Rev.A 13,
1448 (1976)
- /27/ T.W.Ducas, M.G.Littman, M.L.Zimmerman, Phys.Rev.Lett.35,
1752 (1975)
- /28/ G.Belin, L.Holmgren, S.Svanberg, Physica Scripta,
in Vorbereitung
- /29/ D.Popescu, C.B.Collins, B.W.Johnson, I.Popescu,
Phys.Rev.A 9, 1182 (1974)
- /30/ H.T.Duong, J.Pinard, J.L.Vialle, Opt.Comm.22, 79 (1977)
- /31/ T.F.Gallagher, L.M.Humphrey, W.E.Cooke, R.M.Hill,
S.A.Edelstein, Phys.Rev.A 16, 1098 (1977)
- /32/ T.W.Ducas, M.G.Littman, R.R.Freeman, D.Kleppner,
Phys.Rev.Lett.35, 366 (1975)
- /33/ A.F.J.van Raan, G.Baum, W.Raith, J.Phys.B 9, L173 (1976)

- /34/ G.Leuchs, H.Walther, Proceedings of Laser Spectroscopy III
J.L.Hall Hrsg. Springer Verlag 1977
- /35/ K.Fredrikson, S.Svanberg, J.Phys.B9, 1237 (1976)
- /36/ R.Zygan-Maus, Diplomarbeit, München 1977
- /37/ P.Jacquinet, Colloque du CNRS, Atomes et Molécules
hautement excités, Aussois (1977)
- /38/ H.A.Bethe, E.E.Salpeter, Quantum Mechanics of One and
Two Electron Atoms, Springer Verlag, Heidelberg (1957)
- /39/ W.Hinz, H.Walther, E.Werner, private Mitteilung
- /40/ H.Rausch v.Trautenberg, Z.Physik 54, 307 (1929)
- /41/ T.W.Hänsch, Appl.Opt.11, 895 (1972)
- /42/ R.E.Olson, Phys.Rev.A 15, 631 (1977)
- /43/ P.Lambropoulos, private Mitteilung
- /44/ J.Farley, R.Gupta, Phys.Rev.A 15, 1952 (1977)
- /45/ K.B.S.Eriksson, I.Wenaker, Physica Scripta 1, 21 (1970)
- /46/ P.F.Liao, J.E.Bjorkholm, Phys.Rev.Lett.36, 1543 (1976)
- /47/ K.Fredriksson, H.Lundberg, S.Svanberg, Z.Physik A 284,
429 (1978)

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Herbert Walther für die Anregung zu dieser Arbeit und für seine hilfreiche Unterstützung während ihrer Durchführung. In zahlreichen Diskussionen half er die auftretenden Probleme zu lösen.

Herrn Dr. Karl Werner Rothe und allen Angehörigen der Sektion Physik, die mich während meiner Arbeit unterstützt haben, bin ich zu Dank verpflichtet.

Frau Dipl. Phys. Renate Zygan-Maus danke ich für viele Diskussionen während der Planung der Experimente.

Die finanzielle Hilfe der Deutschen Forschungsgemeinschaft ermöglichte den Aufbau der Apparatur und trug so zum Gelingen der Experimente bei.

LEBENS LAUF

Name	Gerhard Leuchs
Geburtsdatum	14. Juni 1950
Geburtsort	Wuppertal
Staatsangehörigkeit	deutsch
Eltern	Dr. Friedrich Leuchs, Phytopathologe Brigitte Leuchs, geb. Decken

Ausbildung:

Volksschule	1956-1960 in Wuppertal, Neuß, Efferen
Gymnasium	1960-1969 in Köln, Teheran, Hürth
Grundwehrdienst	Juli 1969 - Dezember 1970

Studium der Physik an der Universität zu Köln von Oktober
1970 bis November 1975

Vordiplom	Oktober 1972
Diplom	November 1975

Seit 1976 Promotionsstudium an der Ludwig-Maximilians-
Universität München

Dissertationsdruck
GmbH & Co. KG.

M. SCHADEL

86 Bamberg · Hohe-Kreuz-Str.9b · Tel. 0951/5 44 14